Über die optische Detektion einzelner akustischer Terahertzphononen mit Hilfe von ZnO (Cu)

Lutz Pickelmann

1979

Über die optische Detektion einzelner akustischer Terahertzphononen mit Hilfe von ZnO (Cu)

Inaugural - Dissertation zur
Erlangung des Doktorgrades
der Fakultät für Physik

der

Ludwig - Maximilians - Universität

München

vorgelegt von
Diplomphysiker Lutz Pickelmann

München Februar 1979

1. Gutachter: Prof. Dr. K. Luchner

2. Gutachter: Prof. Dr. R. Sizmann

Tag der mündlichen Prüfung: 18. Juli 1979

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Inhaltsverzeichnis

		S
1.	Einleitung	1
2.	Grundlagen	3
2.1.	Ausbreitung akustischer Phononen in Kristallen	3
2.2.	Grenzschichtprobleme Quelle - Kristall - Detektor	6
2.3.	Lumineszenzeigenschaften von ZnO(Cu)	11
2.4.	Phononenstimulierte Lumineszenz an ZnO(Cu)	15
3.	Schlußfolgerungen aus den bisherigen Arbeiten für die eigenen Experimente	19
3.1.	Quantenausbeuten	19
3.2.	Zeitverhalten des Detektors	20
3.3.	Energiebestimmung bei akustischen Phononen	21
3.4.	Folgerungen für das Experiment	22
4.	Versuchsaufbau	24
4.1.	Anordnung	24
4.2.	Koinzidenzmeßtechnik	27
4.3.	die α- Kanone	30
4.4.	die Thermopulsanordnung	32
4.4.1.	Grundlagen, Präparation	32
4.4.2.	die Ansteuerung der Heizschicht	34
4.5.	das supraleitende Bolometer	36
4.6.	die ZnO - Detektorschichten	39
4.7.	die verwendeten Proben	42

		S
5.	Meßergebnisse	45
5.1.	Messungen an nichtlumineszierenden Kristallen mit aufpräparierter ZnO-Schicht	45
5.1.1.	Thermopulsmessungen	45
5.1.2.	Einfluß der IR - stimulierten Lumineszenz	50
5.1.3.	Beschuß von nichtlumineszierenden Kristallen mit α - Teilchen	56
5.1.4.	Thermopulsmessungen an Si, Phononendetektion durch das supraleitende Bolometer	58
5.2.	Messungen an ZnO - Einkristallen	63
5.2.1.	Verhalten der Lumineszenz bei Thermopulsversuchen	63
5.2.2.	Beschuß von ZnO - Einkristallen mit α - Teilchen	70
5.2.3.	Thermopulsmessungen an ZnO - Einkristallen, Phononendetektion mit supraleitendem Bolometer	75
6.	Diskussion, Vergleich mit den Arbeiten von N.Riehl, A.Müller und R.Wengert	78
7.	mikroskopisches Modell der Thermolumineszenz, Einfluß langwelliger Phononen	88
8.	Zusammenfassung	95
9.	Literaturaufstellung	98

1. Einleitung

Ausgangspunkt dieser Arbeit sind die von N.Riehl und Mitarbeitern durchgeführten Untersuchungen an ZnO(Cu) auf dessen Verwendbarkeit als Detektor für einzelne Terahertzphononen (1 - 7).
ZnO(Cu) zeigt bereits bei 8 K grüne Thermolumineszenz.Diese wird auf die leuchtende Rekombination von Löchern mit angeregten Cu^+- Zentren zurückgeführt, nachdem die Defektelektronen thermisch aus Haftstellen befreit wurden.Für die flachsten Traps wurde eine energetische Tiefe von weniger als 20 meV gemessen.Akustische Phononen in ZnO besitzen bis zu 35 meV Energie.Daher wurde angenommen, daß einzelne hochenergetische akustische Phononen Löcher aus den flachsten Traps befreien können mit anschließender leuchtender Rekombination.Führt man demnach bei Temperaturen unter 8 K ein Phononenpulsexperiment mit ZnO(Cu) als Detektor durch, so könnte man im Prinzip die Ankunft hinreichend hochenergetischer Phononen durch einen Lumineszenzblitz anzeigen.
Gemäß diesen Überlegungen wurden von N.Riehl und Mitarbeitern Experimente angestellt (1 - 7),die sowohl eine direkte Beobachtung der phononenstimulierten Lumineszenz bei Laufzeitmessungen zum Ziel hatten,als auch eine indirekte Messung der Phononeneinwirkung über die Abnahme der im ZnO(Cu) gespeicherten Lichtsumme.Letztere Methode wurde zur Energiebestimmung der Phononen herangezogen.Die Phononenpulse wurden sowohl über die klassische Wärmepulsmethode angeregt, als auch über den Beschuß von Kristallen mit warmen Edelgasatomen und hochenergetischen α- Teilchen.Als Folge wurden sowohl die erwarteten Lumineszenzblitze, als auch die integrale Abnahme der gespeicherten Lichtsumme beobachtet.Hieraus wurde geschlossen, daß mit ZnO(Cu) akustische Phononen im Frequenzbereich $\nu = 4 \times 10^{12}$ Hz bis 8×10^{12} Hz nachgewiesen werden können.Die gefundenen Effekte lassen hohe Quantenausbeuten für diesen Prozeß erwarten.Darüber hinaus ge-

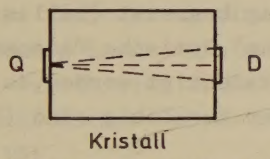
lang die Präparation der ZnO(Cu) - Schichten auf den unterschiedlichsten Substraten,sodaß der Detektor universell einsetzbar ist.
Die vorliegende Arbeit hatte zum Ziel, in weiterführenden Experimenten die Emission von Terahertzphononen beim Einschlag von α- Teilchen auf Kristalloberflächen zeitaufgelöst und energieselektiv zu untersuchen.Als Detektor sollte ZnO(Cu) verwendet werden,da durch den oben beschriebenen Prozeß einzelne Terahertzphononen beobachtet werden können.Die ausgelösten Lumineszenzphotonen können über Einzelphotonenmessung mit Hilfe von Photomultipliern und Koinzidenztechnik weiter untersucht werden.In Ergänzung zu den Messungen der Arbeiten (1-7) wurden Vergleichsmessungen mit der klassischen Methode der Phononendetektion,dem supraleitenden Bolometer, durchgeführt.

2. Grundlagen

2.1. Ausbreitung akustischer Phononen in Kristallen

Die in früheren Jahren durchgeführten Ultraschallexperimente können als Phononenpulsexperimente mit langwelligen Phononen aufgefaßt werden.Die Wellenlängen dieser Phononen erstrecken sich über viele Gitterabstände,sodaß der Kristall näherungs - weise als elastisches Kontinuum beschrieben werden kann.Das wesentliche Kennzeichen eines Ultraschallexperiments ist das abgestrahlte kohärente Wellenfeld.Kohärente Schallfelder sind bisher nur bis zu Frequenzen von 10^{11} Hz zu erzeugen,da darüber hinaus der Wirkungsgrad der Phononenquellen zu klein wird und die Oberflächengüte der Kristalle zu schlecht wird (Rauhigkeit vergleichbar mit Phononenwellenlänge von ca. 1000 A).

Abb. 1 Schematischer Aufbau eines Phononenpulsexperiments



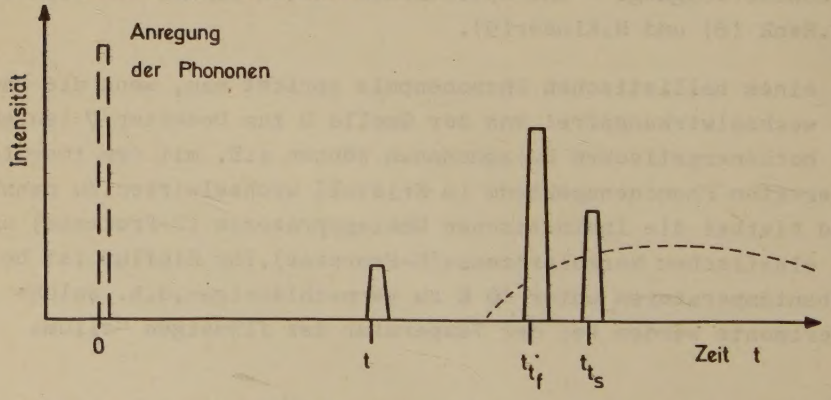
Q Phononenquelle
D Phononendetektor

Phononenpulsexperimente mit Phononen über 10^{11}Hz sind bisher nur mit inkohärenten Quellen und Detektoren realisierbar. Zusammenfassende Darstellungen über die gebräuchlichsten Phononenerzeugungs - und Detektionsmethoden findet man z.B. bei K.F.Renk (8) und H.Kinder(9).

Von einem ballistischen Phononenpuls spricht man, wenn die Phononen wechselwirkungsfrei von der Quelle Q zum Detektor D laufen. Die hochenergetischen Pulsphononen können z.B. mit dem thermisch angeregten Phononenspektrum im Kristall wechselwirken.Zu nennen sind hierbei die inelastischen Umklappprozesse (U-Prozesse) und die elastischen Normalprozesse(N-Prozesse).Ihr Einfluß ist bei Probentemperaturen unter 10 K zu vernachlässigen,d.h. solche Experimente werden bei der Temperatur des flüssigen Heliums

durchgeführt.In realen Kristallen wird die ballistische Ausbreitung der Phononen auch durch Streuung an Kristalldefekten gestört.Als Beispiel sei die Rayleighstreuung an isotopischen Verunreinigungen genannt.Infolge der ω^4 - Abhängigkeit dieses Effekts werden hiervon besonders die hochfrequenten Phononen betroffen.Für Terahertzphononen erwartet man daher eine überwiegend diffuse Ausbreitung in Kristallen.Weiterhin können akustische Phononen mit freien Ladungsträgern in Kristallen wechselwirken und dadurch der propagierende Phononenpuls gedämpft werden (11).Makroskopisch zeigen sich diese Effekte als Beitrag zum Wärmewiderstand des Kristalls.Schaltet man diese Störeffekte durch Verwendung hochreiner,ordnungsfehlerfreier Kristalle weitgehend aus, so ist dennoch die Lebensdauer der höchstfrequenten Phononen durch spontanen Zerfall in niederfrequente begrenzt.Theoretische Schätzungen geben für Terahertzphononen eine Lebensdauer von 10^{-7}s an (12).In Al_2O_3 wurden Lebensdauern von ca. 1,5 μs für $1x10^{12}$ Hz- Phononen gemessen (13,14).Niederfrequente Phononen werden in ihrer Lebensdauer nur durch die sog. Oberflächenstreuung begrenzt (ballistische Ausbreitung bis zur Kristalloberfläche).Optische Phononen brauchen bei diesen Betrachtungen nicht berücksichtigt werden,da sie auch bei sehr tiefen Temperaturen sehr kurzlebig sind (Lebensdauer unter 10^{-12}s) (10).

Abb.2 Schematisches Laufzeitspektrum bei einem ballistischen Phononenpulsexperiment



t_l, t_{tf}, t_{ts} Laufzeiten der longitudinalen und der beiden transversalen Moden

Führt man ein ballistisches Phononenpulsexperiment in der Anordnung gemäß Abb.1 durch,wobei die Ausbreitungsrichtung der Phononen mit einer Kristallhauptachse zusammenfällt, so lassen sich die longitudinalen und beiden transversalen Moden rein beobachten.In Spezialfällen können die beiden transversalen Komponenten entarten (z.B. in kubischen Kristallen in [111] Richtung). Die in Abb. 2 gezeigte Art der Phononenausbreitung wird auch als 1.Schall bezeichnet.Neben den drei ballistisch propagierenden Moden ist noch ein diffuser Anteil eingezeichnet, der von den erwähnten Streumechanismen herrührt.Dieser Beitrag überwiegt bei Terahertzphononenpulsen.

Als 2. Schall bezeichnet man einen Effekt,der nur in Kristallen höchstmöglicher Störungsfreiheit (insbesondere Isotopenreinheit) beobachtet werden kann.In einem schmalen Temperaturbereich oberhalb des ballistischen Bereichs nehmen die N - Prozesse zwischen Pulsphononen und thermischen Phononen stark zu (Temperatur ca. 10 K bis 18 K), nicht jedoch die U - Prozesse.Die Pulsphononen können so indirekt miteinander wechselwirken,die Moden wandeln sich ständig ineinander um.Der Phononenpuls spaltet daher nicht mehr in verschieden schnelle Anteile auf,sondern propagiert mit einheitlicher Geschwindigkeit $v_t / \sqrt{3}$ durch den Kristall. (15 - 18)

Die Phononenfokussierung tritt bei Phononenpulsexperimenten in manchen Kristallen als Folge der elastischen Anisotropien auf (19 - 21).Die Richtung des Energieflusses bei Ausbreitung eines Phononenpulses liegt nicht parallel zu den k-Vektoren.Auch bei einer räumlich isotropen Anregung des Phononenpulses ist der Energiefluß anisotrop.

Bei hohen Phononenintensitäten bilden sich in bestimmten Kristallen Solitonen oder Stoßwellen aus.Sie werden verursacht durch Anharmonizitäten in den Gitterkräften.Ihr auffälligstes Merkmal ist die zeitliche Zusammenziehung des Pulses im Lauf seiner Ausbreitung.(22,23)

2.2. Grenzschichtprobleme Quelle - Kristall - Detektor

Werden zwei Medien mit unterschiedlichen akustischen Eigenschaften aneinandergekoppelt, so treten beim Durchlaufen eines Phononenpulses Reflexionen auf (analog zur Brechung in der Optik).
Das Problem der Phasengrenzen bei Phononenpulsexperimenten wurde am Fall des Thermopulsers in der Literatur eingehend diskutiert.Das von Nethercot und Gutfeld eingeführte Thermopulsverfahren (31) verwendet einen Metallfilm von einigen hundert Angström Dicke,der auf den zu untersuchenden Kristall aufgedampft wird.Durch kurze elektrische Heizimpulse wird der Film erwärmt,die thermisch angeregten Phononen treten aus dem Film in den Kristall über.
Zur Bestimmung der Heizfilmtemperatur und des emittierten Phononenspektrums wird das Weissche Modell verwendet (24):

Bei Abgabe des elektrischen Heizimpulses stellt sich infolge der Elektron - Phononenwechselwirkung innerhalb von 10^{-11} s eine Gleichgewichtstemperatur T_1 ein.Da die typischen Heizpulsdauern von 10^{-8} s bis 10^{-7} s sehr viel größer sind,geht man in diesem Modell von stationären Verhältnissen aus.Der in den Kristall hineinlaufende Phononenpuls ergibt sich als Differenz der Phononenflüsse vom Medium 1 (Thermopulser,Temperatur T_1) ins Medium 0 (Kristall,T_0) und umgekehrt.Der resultierende Phononenfluß wird für die longitudinalen Moden (Index l) und die transversalen Moden (Index t) getrennt berechnet.Die teilweise Umwandlung longitudinaler und transversaler Moden ineinander bei schrägem Auftreffen des Phononenpulses auf die Grenzschicht wird hierbei nicht berücksichtigt.
Die Medien 0 und 1 werden als Schwarze Phononenstrahler beschrieben, deren Abstrahlcharakteristik in das jeweils benachbarte Medium mit den Emissivitätskoeffizienten $e^{(10)}(\omega)$ und $e^{(01)}(\omega)$ berücksichtigt wird.

Bei der Berechnung des resultierenden Phononenflusses muß noch die Randbedingung berücksichtigt werden, daß bei gleichen Temperaturen der Medien der Phononenpuls verschwindet. Für die longitudinalen Phononen ergibt sich als spektrale Strahlungsleistung durch die Fläche A der Grenzschicht

$$(1)\quad P_l(\omega,T_1,T_o)/A = \frac{\hbar\omega^3\, e_l^{(10)}(\omega)}{8\pi^2\, c_l^{(1)}(\omega)^2}\left\{\frac{1}{e^{\hbar\omega/kT_1}-1} - \frac{1}{e^{\hbar\omega/kT_o}-1}\right\}$$

Die Erfüllung der Randbedingung impliziert folgende Bedingung für die Emissivitätskoeffizienten:

$$(2)\quad e_l^{(01)}(\omega) = e_l^{(10)}(\omega)\left\{c_l^{(0)}(\omega)/c_l^{(1)}(\omega)\right\}^2$$

wobei die $c_l^{(i)}$ die longitudinalen Schallgeschwindigkeiten in den Medien i sind.
Der Fall: $e_l^{(10)}(\omega) = 1$ für alle ω wird als " perfect match " bezeichnet, die Berechnung der Emissivitätskoeffizienten aus den akustischen Eigenschaften der Medien wird in der " acoustical mismatch "- Theorie durchgeführt. Für die transversalen Komponenten gelten analoge Ausdrücke. In der Weisschen Theorie wird zwischen den beiden transversalen Komponenten nicht unterschieden (was streng genommen nur bei Entartung richtig ist).
Somit ergibt sich als Gesamtstrahlungsleistung $\bar{P}(T_1,T_o)$

$$(3)\quad \bar{P}(T_1,T_o)/A = \int_0^{\omega_l\,\mathrm{Debye}} P_l(\omega,T_1,T_o)\,d\omega + 2\int_0^{\omega_t\,\mathrm{Debye}} P_t(\omega,T_1,T_o)\,d\omega$$

Für den Fall niedriger Temperaturen des Thermopulsers ergibt sich als Näherung ein Ausdruck analog zum Stefan - Boltzmann - Gesetz für elektromagnetische Strahlung:

$$(4)\quad \bar{P}(T_1,T_o)/A = \frac{\pi^2}{120\hbar^3}\left\{\frac{e_l^{(10)}}{c_l^{(1)\,2}} + 2\,\frac{e_t^{(10)}}{c_t^{(1)\,2}}\right\} k_B^4\,(T_1^4 - T_o^4)$$

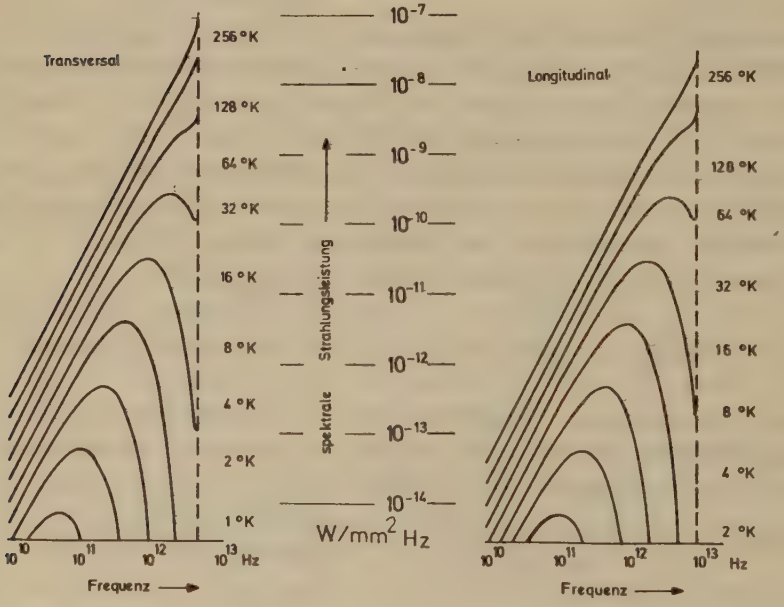
Die Beziehung (4) gilt nur für den Fall, daß das angeregte Phononenspektrum weit von der Debyegrenze entfernt ist (für die elektromagnetische Strahlung existiert eine solche Grenze nicht).

Da für die Ausbreitungsgeschwindigkeiten von Photonen und Phononen gilt

$$c_{phot} \approx 10^5 c_{phon} \quad ,$$

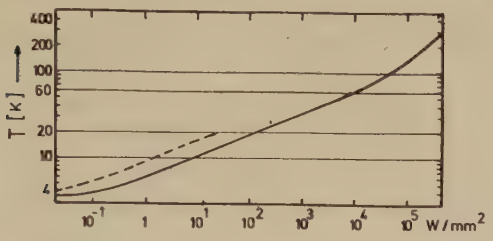
wird von einem Thermopulser in Form von Phononen 10^{10}mal mehr Energie abgestrahlt als in Form von Photonen.Dieser Gesichts - punkt ist wichtig für die Diskussion der später beschriebenen IR - Stimulationseffekte an ZnO(Cu) im Zusammenhang mit Thermo-stoßexperimenten.

Abb. 3 spektrale Phononenstrahlungsleistung für Konstantan unter " perfect match"-Bedingung, T_o = 0 K
Berücksichtigung von Dispersion und Abschneidefrequenz
(entnommen (24))



Zu Erkennen ist die Erfüllung des Wienschen Verschiebungsge-setzes bis zu etwa 32 K.Bei höheren Heizpulstemperaturen weicht das Emissionsverhalten davon ab.

Abb. 4 Temperatur des Thermopulsfilms in Abhängigkeit von der elektrischen Heizleistung,Substrattemp. 3,4K Konstantan auf Saphir (entnommen (24))



Die durchgezogene Kurve gilt für den " perfect match " - Fall, die gestrichelte für akustische Fehlanpassung.Die stärkere Temperaturerhöhung in letzterem Fall ist leicht einzusehen, da im Vergleich zum Fall des " perfect match " weniger Energie abgestrahlt werden kann und somit die verbleibende Energie zu einer stärkeren Temperaturerhöhung führt.

Verbesserungen des Weisschen Modells wurden von N.Perrin und H.Budd (26) vorgeschlagen.Hierbei werden die Relaxationsvorgänge beim Einschalten des Heizpulses berücksichtigt,nämlich die Thermalisierung der elektrischen Energie einerseits und das Verhalten der Phononen beim Übertritt vom Pulser ins Substrat andererseits.Es wurde dabei eine bevorzugte Wechselwirkung der Elektronen mit hochfrequenten Phononen gefunden, sodaß das emittierte Phononenspektrum zu höherenergetischen Phononen hin verschoben ist.

Die "acoustical mismatch"-Theorie werden die Transmissionskoeffizienten (komplementär dazu die Reflexionskoeffizienten) beim Übertritt über die Grenzflächen Quelle - Kristall und Kristall - Detektor berechnet.Eingangs dieses Kapitels wurde bereits erwähnt,daß der relativ komplizierte Fall der Modenumwandlung für schrägen Einfall auf die Grenzfläche vernachlässigt wird.Die Beschränkung der Untersuchung auf senkrecht auftreffende Phononen ist in vielen Fällen gerechtfertigt, da bei einer Versuchsanordnung gemäß Abb. 1 nur solche Phononen

detektiert werden.
Für den Spezialfall des senkrechten Einfalls ergeben sich folgende Beziehungen:

(5) $T_{t\,1}^{(10)} = T_{1\,t}^{(10)} = 0$ keine Modenumwandlung

(6) $T_{11}^{(10)} = 4\,\rho^{(1)}c_1^{(1)}\,\rho^{(0)}c_1^{(0)} / \left[\rho^{(1)}c_1^{(1)} + \rho^{(0)}c_1^{(0)}\right]^2$

(7) $T_{t_1t_1}^{(10)} = T_{t_2t_2}^{(10)} = 4\rho^{(1)}c_t^{(1)}\,\rho^{(0)}c_t^{(0)} / \left[\rho^{(1)}c_t^{(1)} + \rho^{(0)}c_t^{(0)}\right.$

Hierbei sind die T die Transmissionskoeffizienten, die hochgestellten Indizes stehen für den Phononenübertritt vom Medium 1 nach 0.Die tiefgestellten Indizes $1, t_1$ und t_2 symbolisieren die Polarisationen der Phononen.Für die transversalen Moden wird eine einheitliche Schallgeschwindigkeit c_t angenommen.
ρ Dichte der Medien.

Aus den Transmissionskoeffizienten lassen sich die Emissivitäten berechnen.

(8) Definition $e_1^{(10)}(\omega, \vartheta_i) = \dfrac{I_1^{(0)}(\omega,\ T_1, \vartheta_i)}{I_1^{(0)}(\omega,\ T_1, \vartheta_i)}$ perfect match

analog für die transversalen Moden.

Gemäß dieser Definition ergibt sich

(9) $e_1^{(10)}(\omega, \vartheta_i) = \left[c_1^{(1)} / c_1^{(0)}\right]^2 \left\{ T_{t_1 1}^{(10)}(\vartheta_i) + T_{11}^{(10)}(\vartheta_i) \right\}$

(10) $e_t^{(10)}(\omega, \vartheta_i) = 1/2 \left[c_t^{(1)} / c_t^{(0)}\right]^2 \left\{ T_{t_1t_1}^{(10)}(\vartheta_i) + T_{t_2t_2}^{(10)}(\vartheta_i) + T_{1t_1}^{(10)}(\vartheta_i)\right.$

Diese Beziehungen gelten allgemein auch für den schrägen Phononeneinfall (ϑ_i, Ausbreitungswinkel im Medium 0).Die Abstrahlcharakteristik im " perfect match " Fall wird durch das Lambertsche cos - Gesetz beschrieben (diffuser Strahler).

Die Grenzen dieser Theorie sind naturgemäß dann erreicht, wenn die Medien nicht mehr als elastische Kontinua beschrieben werden können und wenn die Störungen der Grenzfläche eine Ausdehnung von der Größenordnung der Phononenwellenlänge besitzen.Eine quantitative Erfüllung dieser Beziehungen ist daher nur für Ultraschall bis zu 10^{11}Hz zu erwarten.
Die Verwendung dieser Theorie für den Fall der Terahertzphononen soll nur zu einer Abschätzung der Phononenpulsintensitäten dienen.Der wesentlichste Einfluß einer Grenzschicht für hochfrequente Phononen wird in der zerstreuenden Wirkung (auch bei gerichtetem Einfall) liegen.
Die über die " acoustical mismatch "-Theorie gewonnenen Emissivitätswerte konnten zumindest größenordnungsmäßig von Renk, Deisenhofer und Peckenzell für 10^{12} Hz - Phononen am System Konstantan - Saphir verifiziert werden. (13,14)

2.3. Lumineszenzeigenschaften von ZnO(Cu)

ZnO gehört zu den II - VI-Verbindungen, die wegen ihres großen Bandabstands von 2 bis 6 eV Lumineszenz im sichtbaren Spektralbereich zeigen.Neben Kantenemission und Exzitonenlinien wird an ZnO auch grüne und gelbe Lumineszenz beobachtet.
Thermolumineszenz:
ZnO wird bei der Temperatur des flüssigen Heliums mit UV - Strahlung (λ = 365 nm oder weniger) angeregt und gewartet,bis das Nachleuchten auf Werte in der Größenordnung des Eigenrauschens des beobachtenden Photomultipliers abgeklungen ist (Dauer von einigen Minuten). Wird nun der Kristall langsam aufgeheizt (einige Grad /min), so tritt in bestimmten Temperaturbereichen grüne und gelbe Lumineszenz auf (Thermolumineszenz,in der sog. Glowkurve wird die Lumineszenzintensität gegen die Temperatur aufgetragen)

Abb 5 : Typische Glowkurve für ZnO(Cu) (entnommen (32))

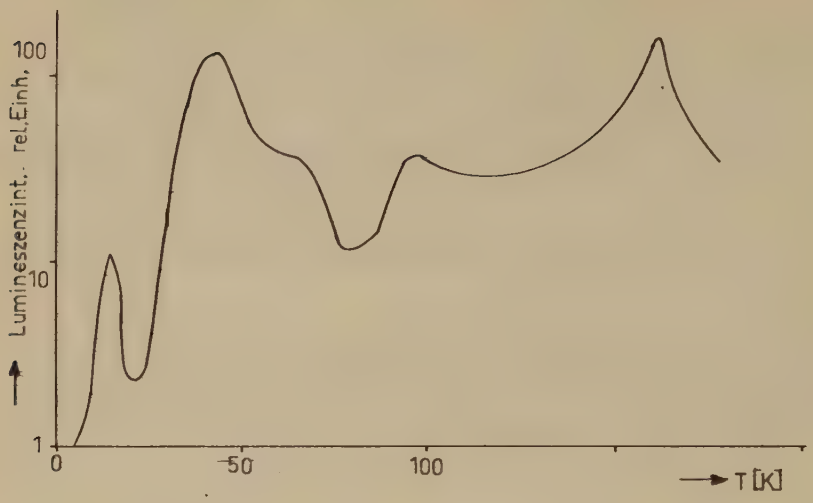
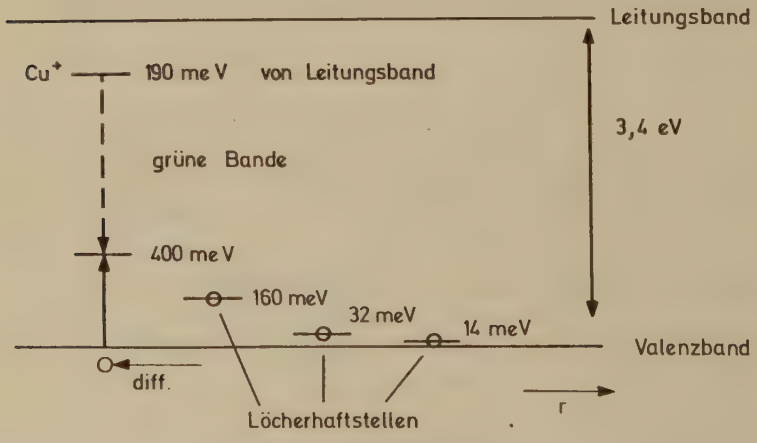


Abb 6:Bandschema zum Lumineszenzmodell (entnommen (32))
zu beachten: Abszisse ist Ortsvariable



Grundlage des Lumineszenzmodells ist das in Abb.6 gezeigte Schema.Durch die UV - Strahlung werden im Kristall freie Elektronen und Löcher erzeugt.Verschiedene Kristalldefekte führen zur Ausbildung von Löcherhaftstellen,deren Energieniveaus in der Nähe der Valenzbandkante liegen (32,33)In diesen Traps können freie Löcher eingefangen werden.Freie Elektronen können an einem Cu^{++} - Zentrum eingefangen werden,es entsteht der angeregte Cu^{+} - Zustand.Werden die Löcher z.B. thermisch aus ihren Traps befreit, so können sie zu einem Cu^{+} - Zentrum diffundieren und dort leuchtend rekombinieren.Es tritt die für das Cu - Zentrum typische grüne Lumineszenz auf, es handelt sich um eine sog. bimolekulare Reaktion.

Neben der Befreiung der Löcher durch thermische Anregung kann auch eine Entleerung durch Absorption eines IR - Quants erfolgen (sog. infrarotstimulierte Lumineszenz : IRS).Flache Haftstellen können bereits durch IR - Strahlung von über 30 µm Wellenlänge entleert werden.Dies erfordert spezielle Abschirmungsmaßnahmen,um das Rauschen der ZnO(Cu)- Präparate infolge IR - Hintergrundstrahlung von der Meßapparatur zu vermeiden.(32,34) Es ist zu beachten, daß der Rekombinationsprozeß am Cu^{+} - zentrum unabhängig vom Befreiungsmechanismus der Löcher ist,es tritt also auch bei IRS der Löcherhaftstellen die grüne Lumineszenz auf.

Die erwähnte gelbe Thermolumineszenz ist auf folgenden Mechanismus zurückzuführen:
Es existieren auch für Elektronen Haftstellen (in der Nähe der Leitungsbandkante), als angeregtes Zentrum dient Li^{++} (Aufnahme eines Loches durch Li^{+}).Bei thermischer Befreiung der Elektronen und Rekombination am Li^{++}-Zentrum entsteht die charakteristische gelbe Lumineszenz.Es sei darauf hingewiesen, daß infrarotstimulierte gelbe Lumineszenz nicht beobachtet wird.Es tritt zwar die entsprechende IR - Absorption auf (aus der sich die Traptiefe bestimmen läßt),jedoch erfolgt kein leuchtender Übergang.Es wird daher geschlossen,daß der Rekombinationsvorgang anders verläuft als bei der grünen Lumineszenz (es könnte sich um einen Donor - Akzeptorübergang handeln) (36).

Aus der Thermolumineszenz und der IRS lassen sich die Traptiefen bestimmen.Hierbei ergeben sich für die beiden Methoden jedoch unterschiedliche Werte.
Es gilt (32)

(11) $$E_{opt} \approx 1{,}5 \; E_{ther}$$

Als Ursache dieses Unterschieds wird die Trägheit des Gitters gegenüber dem schnellen optischen Übergang angenommen (Franck - Condon - Prinzip).Im Gitter bleibt dabei eine Restpolarisierung zurück, die überwunden werden muß.Bei der thermischen Befreiung befinden sich Ladung und Gitter immer im Gleichgewicht, sodaß keine Polarisierung auftritt (adiabatischer Prozeß).

Es wurden folgende Haftstellentiefen gefunden: (32)

Löcherhaftstellen

Ausheiztemperatur K	E_{ther} (meV)	E_{opt} (meV)
8	14	21
18	32	48
90	160	240
Elektronenhaftstellen		
40	73	110
60	110	165
120	220	330

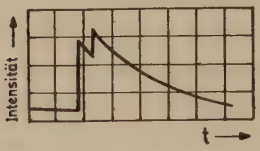
2.4. Phononenstimulierte Lumineszenz, ZnO(Cu) als Phononendetektor

Die Debyetemperatur von ZnO mit ca. 410 K entspricht einer maximalen Energie der akustischen Phononen von 35 meV (Frequenz $\nu = 8 \times 10^{12}$ Hz). Von der Energiebilanz her gesehen sollte es einzelnen akustischen Phononen mit Frequenzen größer ca. 4×10^{12} Hz möglich sein, Löcher aus den flachsten Traps zu befreien. Welche der beiden Energiewerte E_{ther} oder E_{opt} bei einem solchen Prozeß zugrundegelegt werden muß, kann von vornherein nicht entschieden werden, möglicherweise tritt auch ein neuer Wert, E_{phon}, auf.

N. Riehl und Mitarbeiter studierten das Ausbreitungsverhalten von Terahertzphononen sowohl an verschiedenen nichtlumineszierenden Kristallen (mit einer dünnen ZnO - Schicht als Detektor), als auch an ZnO(Cu) - Einkristallen, bei denen durch eine spezielle Anregungstechnik mit kurzwelliger UV - Strahlung eine nur dünne Oberflächenschicht zu Detektionszwecken verwendet wurde. Die Phononenpulse wurden durch die Thermopulsmethode, durch Beschuß mit thermischen Edelgasatomen und Beschuß mit hochenergetischen α - Teilchen erzeugt.
Laufzeitmessungen wurden nur mit den ersten beiden Phononenerzeugungsmethoden vorgenommen, die indirekte Messung der Phononeneinwirkung über die Abnahme der Lichtsumme wurde in allen drei Fällen durchgeführt.
Im Detail wurden von N. Riehl und Mitarbeitern folgende Ergebnisse gefunden:

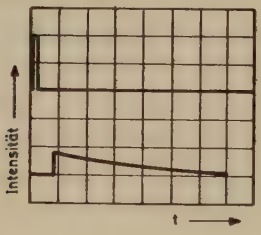
a, Laufzeitmessungen:
Die folgenden Abbildungen stellen die Photomultipliersignale dar, die nach Abgabe eines einzigen Phononenpulses zu messen waren. (Oszillographenaufnahmen). Der Oszillograph wurde im Fall der Thermopulsversuche durch ein vom Heizpuls abgezweigtes elektrisches Signal getriggert, bei der Gasbeschußmethode wurde auf der Vorderseite des Kristalls ebenfalls eine dünne ZnO-Schicht aufgebracht, die beim Eintreffen des Gasstroms lumineszierte und so die Messung auslöste.

Abb. 7 Laufzeitmessung bei Gasbeschuß eines 3 mm dicken SiO_2 - Einkristalls (entnommen (3)).Der erste Peak stammt von der Vorderseite des Kristalls (Start), der verzögerte zweite Peak vom eigentlichen Phononen-detektor



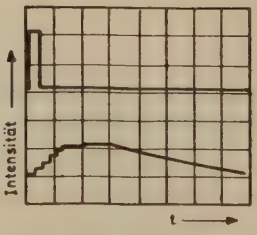
Zeitmaßstab:
20 µs /Einheit

Abb. 8 Laufzeitmessung bei Thermostoßanregung, 3mm dicker LiF - Kristall.Heizleistung 1,5 Watt/mm^2 (entnommen (3))



Zeitmaßstab:
20 µs /Einheit
obere Spur: Heizpuls
untere Spur: Lumi-neszenz des Detektors

Abb. 9 Laufzeitmessung bei Thermostoßanregung,ZnO - Einkristall mit dünner aktivierter Detektionszone,Heizleistung ca. 1,5 Watt/mm^2 (entnommen (3))



Zeitmaßstab:
10 µs /Einheit
obere Spur: Heizpuls
untere Spur: Detektor-signal

b, Messungen der Lichtsummenverluste:

Regt man ZnO(Cu) mit UV - Strahlung an,dann wird eine gewisse Lichtsumme gespeichert,je nach Zahl der besetzten Traps und angeregten Cu - Zentren.Die unter a, beschriebenen Lumineszenzeffekte werden eben aus dieser Lichtsumme gespeist, sodaß umgekehrt die Einwirkung von Phononen auch an dieser Lichtsummenabnahme gemessen werden kann.Hierzu wird eine Referenzglowkurve von der Detektorschicht aufgenommen ohne Einwirkung von Phononen. Danach wird die Detektorschicht erneut angeregt und das Phononenexperiment durchgeführt.Nimmt man nun wieder die Glowkurve auf, so zeigt sich, daß verschiedene Bereiche ausgeleuchtet sind. Hieraus werden Rückschlüsse auf die beteiligten Phononen gezogen.

Abb. 10 Beeinflussung der Glowkurve einer ZnO - Detektorschicht bei Gasbeschuß eines 1 mm dicken Saphirkristalls (entnommen (6))

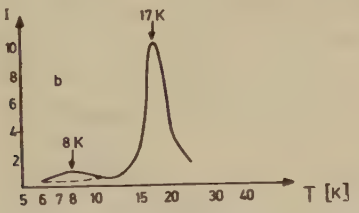


Abb. 11 Beeinflussung der Glowkurve einer dünnen angeregten Oberflächenschicht eines ZnO - Einkristalls als Folge eines einzigen Thermopulses. (entnommen (3))

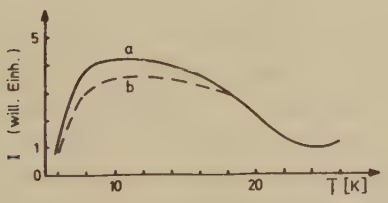
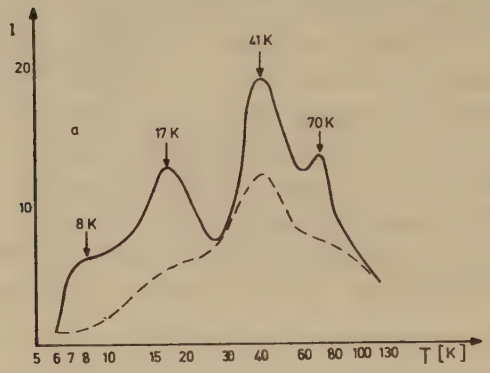


Abb. 12 Beeinflussung der Glowkurve einer ZnO -Detektorschicht auf 1 mm dickem Saphireinkristall bei Beschuß mit α - Teilchen (entnommen (6))



Die in a, und b, beschriebenen Effekte wurden interpretiert als die Einwirkung hochfrequenter Pulsphononen auf den ZnO - Detektor.Die in den Abbildungen 7 , 8 gezeigten Laufzeiten sind jedoch für eine ballistische Ausbreitung wesentlich zu groß.Es wird daher auf eine diffuse Ausbreitung infolge Rayleigh-streuung geschlossen.Der in Abbildung 9 gezeigte Signalverlauf wird auf Mehrfachreflexionen der Phononen an der Kristalloberfläche zurückgeführt.(1,3)
Wesentlichstes Ergebnis der Lichtsummenreduktionsmessungen ist die Entleerung von Traps mit größeren Tiefen als 35 meV bei Kristallbeschuß mit α - Teilchen.Dies wird auf Mehrphononenprozesse zurückgeführt, die sich als Folge einer besonders hohen Phononendichte beim Einschlag eines α - Teilchens ergibt.Die Phononenpulse breiten sich nach der Meinung von N.Riehl und Mitarbeitern in Form von Solitonen aus.

3. Schlußfolgerungen aus den bisherigen Arbeiten für die eigenen Experimente

3.1. Quantenausbeuten

N.Riehl und Mitarbeitern machten in ihren Arbeiten (1 - 7) keine Angaben über die Quantenausbeuten der phononenstimulierten Lumineszenz.Daher soll hier eine grobe Abschätzung für die Ausbeuten unter Verwendung der in den früheren Arbeiten gemachten Angaben gegeben werden.Ausgangspunkt für die folgenden Überlegungen sind die Messungen an ZnO - Einkristallen, deren Ergebnisse in den Abb. 9 und 11 dargestellt sind. Der über eine Photomultiplier - Oszillograph - Anordnung beobachtete Lumineszenzblitz (Abb.9) als Folge eines einzigen Thermopulses besteht offensichtlich aus einer Vielzahl von Photonen.In Übereinstimmung damit wird ein Lichtsummenverlust von ca.10% festgestellt.(Abb. 11).Die Heizleistung betrug 1,5 W/mm^2. Über die Heizfilmfläche wurden keine Angaben gemacht,jedoch kann sie infolge der Kristallabmessungen maximal einige mm^2 betragen.Gemäß der Weisschen Theorie erreicht der Heizfilm hierbei eine Temperatur von ca. 10 K (Abb. 4). Wie aus Abb. 3 hervorgeht, ist diese Heizleistung recht gering für einen Phononenpulsversuch im Terahertzbereich.Größenordnungsmäßig wird nur ein Promille der Leistung in die Erzeugung von Terahertzphononen gesteckt.Von diesen Phononen gelangt wiederum nur ein Bruchteil zum Detektor (perfect match: angeregte Detektorzone im ZnO - Einkristall).Aus ballistischen Thermopulsexperimenten (31) weiß man,daß ca. 10% der abgestrahlten Phononen direkt zum Detektor gelangen (bei Laufstrecken von 10 mm und mehr) Die Terahertzphononen werden stärker gestreut als die längerwelligen ballistischen Phononen, jedoch sind die Laufstrecken in den von N.Riehl und Mitarbeitern verwendeten Kristallen nur ca. 1 bis 3 mm lang.Darüber hinaus erfaßt man bei der Messung der Lichtsummenreduktion die Phononen unabhängig von ihrer Ausbreitungszeit (zeitlich integrierender Detektor).Nimmt man daher an, daß ca. ein Prozent der erzeugten Phononen zum Detektor gelangt, dann erfolgt die Lichtsummenreduktion durch

ca. 10^{10} Terahertzphononen bei Abgabe eines Heizimpulses mit 10^{-5} Ws Energie (und der obigen Leistungsdichte).Der Lichtsummenverlust (Abb. 11) im Detektor entspricht ungefähr 10^{7} Photonen (abgestrahlt in 4π).Dies ergibt sich aus dem durchschnittlichen Lichtsummengehalt bei ZnO - Kristallen von 10^{9} Photonen/mm^3 im Glowkurvenbereich bis 20 K.(32,33). Die kurzwellige UV-Strahlung zur Anregung des Detektors dringt nur ca. 10 μm in den Kristall ein.Zusammen mit der Detektorfläche von ca. 10 mm^2 ergibt sich der obige Wert für den Lichtsummenverlust.

Grob abgeschätzt ergibt sich somit die Quantenausbeute der phononenstimulierten Lumineszenz zu 10^{-3} Photonen/Phonon (Terahert

3.2. Zeitverhalten des Detektors

Bei IRS - Messungen an ZnO(Cu) wurde bei Anregung mit zeitlich scharfen Infrarotpulsen von weniger als 10 ns Dauer ein exponentielles Abklingen der Lumineszenz mit einer Zeitkonstanten von 400 ns gemessen.Diese Lebensdauer wird auf ein Zwischenniveau zurückgeführt, das vom befreiten Loch vor seiner Rekombination am Cu^{+}- Zentrum eingenommen wird. (35). Das Zeitverhalten des Nachleuchtens ist also unabhängig vom Entleerungsmechanismus der Traps und es ist somit auch anzunehmen, daß die phononenstimulierte Lumineszenz dieses Abklingverhalten zeigt.(es kann darüber hinaus auch Langzeitabklingen geben (Phosphoreszenz), jedoch ist dieser Beitrag wesentlich schwächer).Das in den Abbildungen 7,8,9 gezeigte Abklingverhalten von mehreren μsec Dauer ohne die schnelle Komponente ist daher nicht ganz verständlich.Darüber hinaus ergeben sich folgende weitere Diskrepanzen:

a, die Kurven 7,8,9 zeigen einheitlich scharfe Anstiege der Lumineszenz (innerhalb von 10^{-8}s (?)), obwohl z.B. beim Gasbeschuß (Abb.7) die Geschwindigkeitsverteilung der Gasatome eine zeitliche Verschmierung des Phononenanregungspulses bewirkt.

b, die zeitliche Breite des an der Quelle angeregten Phononenpulses von mehreren µs Breite ist im Detektorsignal nicht enthalten, vielmehr setzt das Abklingen unmittelbar nach der schnelle Anstiegsflanke ein.

c, die große Laufzeit der Pulse können nur durch Streu - prozesse erklärt werden, die weder die scharfen Anstiegsflanken zulassen, noch die gezeigte Form des Abklingens.

Sättigungseffekte scheiden aus, da nur ca. 10% der Lichtsummen bei diesen Messungen entleert werden.

3.3. Energiebestimmung der akustischen Phononen

Bei der Aufnahme der Differenzglowkurven 10 , 11 , 12 zeigten sich je nach Art der Phononenerzeugung unterschiedlich ausgeleuchtete Bereiche der Lichtsummengehalte.
In der Reihenfolge Gasstoß, Thermostoß und Beschuß mit α- Teilchen wurden immer tiefere Traps entleert (4).
Besonders im letzten Fall überraschte die Ausleuchtung von Traps mit ca. 100 meV Tiefe.Dies wurde als die Wirkung von Multiphononenprozessen erklärt, die infolge hoher Phononenerzeugungsdichten auftreten.Die Ausbreitung der Phononenpulse soll hierbei in Form von Solitonen stattfinden.Bei Phononenerzeugung durch Gasbeschuß und Thermostoß lagen die Tiefen der entleerten Traps im Bereich der Energien einzelner akustischer Phononen.Die Unterschiede in den ausgeleuchteten Glowkurvenbereichen wurden auf unterschiedliche Phononen - energien zurückgeführt.Es sei jedoch angemerkt, daß gegen die Vermutung der Phononenausbreitung in Form von Solitonen einige Punkte der Theorie von Narayanamurti und Varma sprechen (22). Hierauf wird in der späteren Diskussion eingegangen.

3.4. Folgerungen für das eigene Experiment

Ziel der vorliegenden Arbeit ist die Untersuchung akustischer Terahertzphononen, die in der Folge der Wechselwirkung von Teilchenstrahlen mit Festkörpern auftreten.Ansatzpunkt hierfür sind die bisher gefundenen Phononeneffekte bei Beschuß von Kristallen mit α- Teilchen (1-7).ZnO(Cu) soll als Phononendetektor verwendet werden, da es die Möglichkeit bietet, den interessierenden Spektralbereich energieselektiv zu untersuchen und über die optischen Signale den Einsatz von Einzelphotonenmessung und Koinzidenztechnik erlaubt.Dadurch kann die Nachweiswahrscheinlichkeit für Phononen und die Zeitauflösung verbessert werden.Die Anwendung kernphysikalischer Meßtechnologien erlaubt es, über den quantenhaften Detektionsprozeß Einzelphononenereignisse zu untersuchen.(Die meisten Phononendetektoren untersuchen Phononenströme) Umgekehrt sollen die Eigenschaften des ZnO(Cu)-Phononendetektors näher bestimmt werden, insbesondere soll in Weiterführung der Überlegungen aus dem Abschnitt 3.3. der Einsatz bei energieselektiven Messungen studiert und entsprechende Optimierungen vorgenommen werden.

Um Vergleichsmöglichkeiten mit schon bekannten Detektoren zu erhalten, wurden erstmals in diesem Zusammenhang Testmessungen mit einem klassischen Phononendetektor,dem supraleitenden Bolometer, vorgenommen.Damit sollte es auch möglich sein, die angedeuteten Inkonsistenzen in den früheren Ergebnissen aufzuklären.

Für die Verwendbarkeit des Systems ZnO(Cu) als Phononendetektor sind schließlich auch mögliche Störeinflüsse bestimmend,wie die Entleerung der Traps durch Infrarotstrahlung oder Thermolumineszenz.Der Einfluß dieser Effekte ist bei zeitauflösenden Messungen relativ einfach zu erkennen,bei der indirekten Glowkurvendifferenzmessung jedoch besteht eine solche Kontrolle nicht,bzw. waren die entsprechenden Testmessungen ihrerseits nur indirekt durchführbar (1-6).

Bei Laufzeitmessungen können IRS - Einflüsse (die z.B. an die Phononenpulserzeugung gekoppelt sind) durch ihr promptes

Auftreten identifiziert werden.Die verzögerten Signale der mit Schallgeschwindigkeit laufenden Phononen sind hiervon gut zu unterscheiden.
Thermolumineszenz (Einstellung einer höheren Probentemperatur) und die Wirkung von Terahertzphononenpulsen (die dem thermischen Spektrum des Kristalls überlagert sind) lassen sich wie folgt voneinander trennen:

a, Sei bei einem Thermopulsexperiment e der Energiegehalt des Heizpulses,p die Heizleistung und d die Pulsdauer, so ist

$$e = p\,d$$

Variiert man nun p und d so,daß e immer konstant ist,so wird sich bei gewöhnlicher Thermolumineszenz die Ausbeute nicht ändern, da sich als Folge des Pulses jedesmal die gleiche Probentemperatur einstellt (Pulsdauer sei klein gegenüber der Dauer der Thermalisierung).Bei Ausleuchtung infolge von Terahertzphononen ist die Ausbeute abhängig von der Pulsleistung.Die Heizfilmtemperatur ergibt sich aus Gleichung (4)(vollständige Abstrahlung der Energie in Form von Phononen).Die spektrale Strahlungsleistung im Terahertzbereich ergibt sich aus der Planckschen Strahlungsformel (1)

b, Bei Stimulation durch Terahertzphononen wird das Zeitverhalten des Detektors im wesentlichen bestimmt durch die Diffusion infolge der Streuprozesse (Ficksche Gesetze). Bei der Thermolumineszenz kann die Wärmediffusion durch verschiedene andere experimentelle Voraussetzungen beeinflußt werden,so z.B. über die Größe der Kristallprobe und der damit verbundenen Wärmekapazität oder die Güte der Ankopplung des Kristalls an den Probenhalter.

4. Versuchsaufbau

4.1. Anordnung

Die im Zuge dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurden an einem Heliumkryostaten der Firma Sulfrian durchgeführt. Durch das Abkühlen der Kristallproben werden die hochfrequenten thermischen Phononen ausgefroren und dadurch die Wahrscheinlichkeit für Umklappprozesse zwischen Pulsphononen und thermischen Phononen weitgehend reduziert.
Der Meßteil des Kryostaten ist schwanzartig ausgebildet, um durch die kompakte Anordnung einen großen Beobachtungsraumwinkel zu erhalten.(Abb. 13)Es konnte eine Probentemperatur von 5 K eingestellt werden, durch Abpumpen über dem Heliumvorrat war eine Temperatursenkung auf 4 K möglich.Bei diesen Temperaturen sind auch die flachsten Traps zu besetzen.Eine vorzeitige Entleerung der Traps durch IR - Hintergrundstrahlung der Apparatur und Beobachtungsfenster wird durch Abschirmen mit heliumgekühlten Metallschilden und KG 3 - Fenstern vermieden (34). Die Qualität der IR - Abschirmmaßnahmen (z.B. auch an Durchführungen von Kabeln in den Probenraum) läßt sich direkt am Photonenrauschen des ZnO(Cu) - Detektors erkennen.

Abb. 13 Unterer Teil des Kryostaten,Probenraum

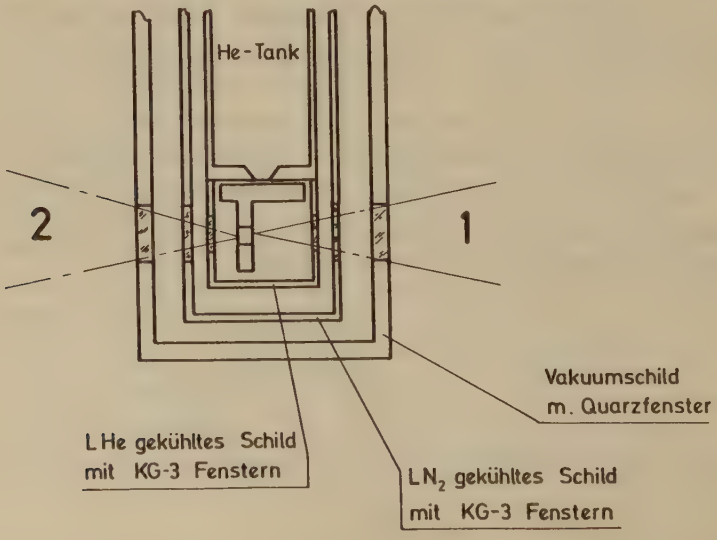
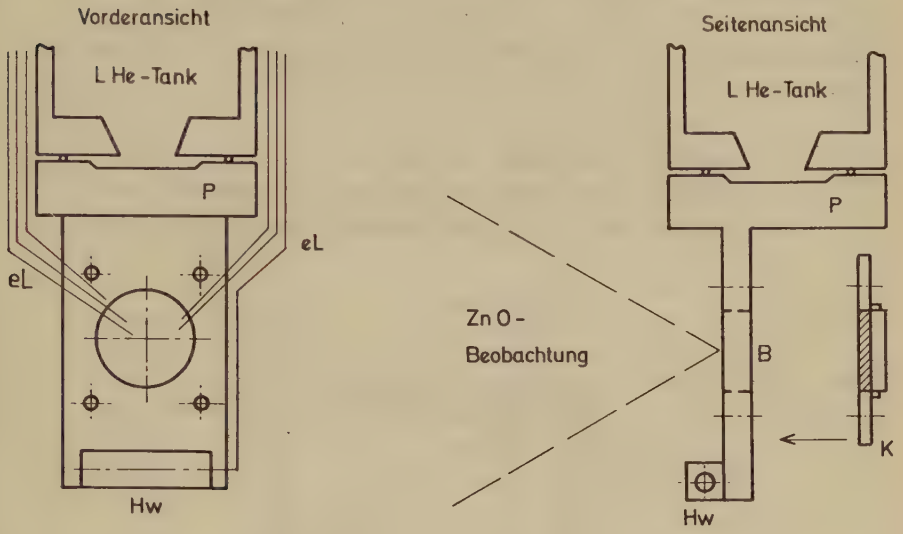


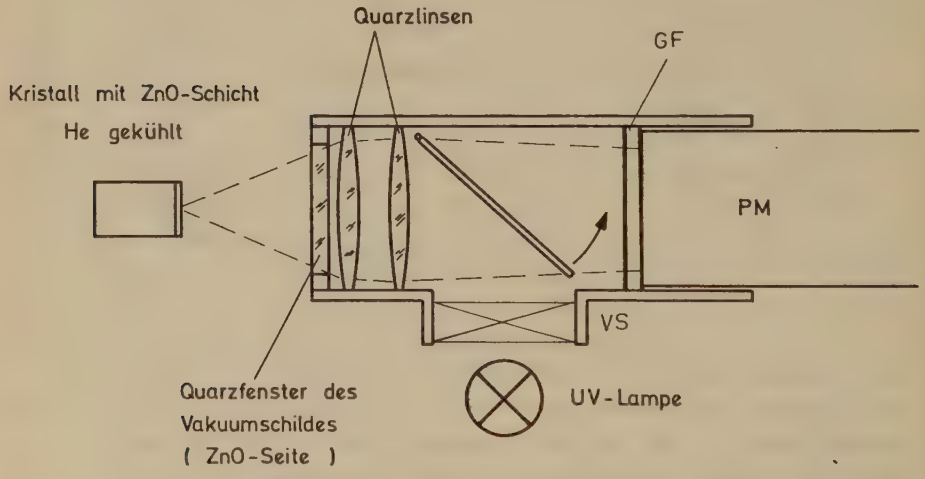
Abb. 14 a,b Vorder und Seitenansicht des Aufbaus im Pro - benraum ohne die heliumgekühlte IR - Abschirmung



Der Probenhalter P schließt den He - Tank ab.Der direkte Kontakt mit dem Heliumvorrat führt zu einer sicheren Ab - kühlung auf 5 K.Der in der Fassung K gehalterte Kristall wird über einer Bohrung B an den Probenhalter geflanscht, sodaß er von beiden Seiten betrachtet werden kann.
Zur Durchführung von Glowkurvenmessungen,bzw. zur Einstel - lung des Arbeitspunkts des supraleitenden Bolometers wurde ein Heizwiderstand HW (100 Ohm,4 Watt) verwendet.Er wurde in einem Kupfergehäuse gefaßt, das seinerseits wieder an den Probenhalter gekoppelt wurde.Hierdurch konnte eine IR - Einstrahlung durch den aufgeheizten Widerstand auf die Probe vermieden werden.

Zur verlustfreien Übertragung der elektrischen Heizimpulse beim Thermopulsexperiment und der Bolometersignale wurden 50 - Ohm - Subminaxkabel (eL) verwendet.Zur Temperatur - bestimmung wurde ein AuFe - Chromel - Thermopaar verwendet , dessen Kennlinie im Temperaturbereich von 4 K bis 60 K nahezu linear verläuft.

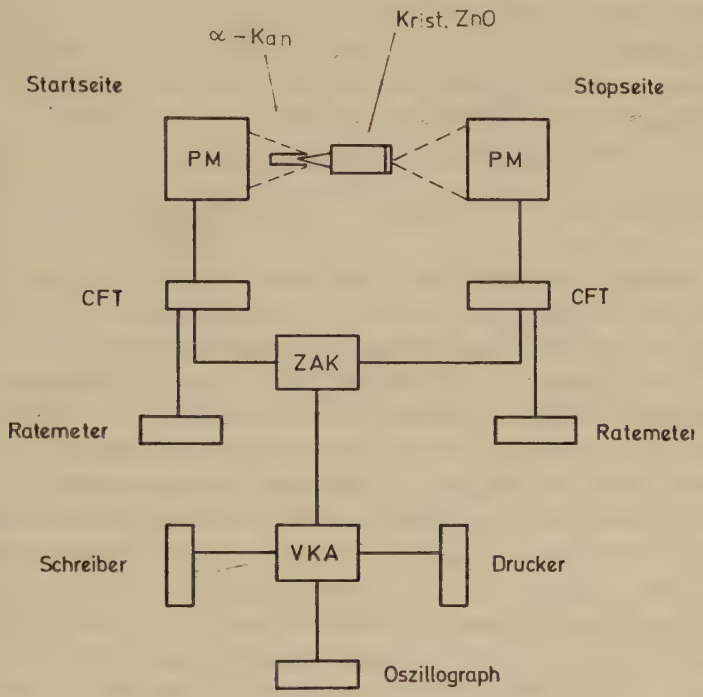
Abb. 15 : Optische Anordnung zum Anregen der ZnO-Schicht mit UV - Strahlung und zur Beobachtung der Lumi - neszenz durch ein gemeinsames Kryostatenfenster



Ein Photomultiplier Valvo DVP 56 ist starr am Kryostaten montiert und beobachtet über zwei Quarzlinsen und ein Grünfilter G die Lumineszenz der ZnO(Cu)-Detektorschicht.Um die Schicht anzuregen, wird ein Aluminiumspiegel in den Strahlengang geklappt und der Verschluß VS geöffnet.Dadurch wird die Strahlung der HQV 125 W - Lampe auf den Detektor gelenkt. Nach Beendigung der Anregung wird VS geschlossen und der Spiegel wieder in die Ruhestellung zurückgefahren.

4.2. Die Koinzidenzmeßtechnik

Abb. 16 Blockschaltbild der Koinzidenzanordnung zur Laufzeitmessung der Phononen bei Beschuß eines Kristalls mit α - Teilchen



Die Emission eines α- Teilchnes aus dem Pu^{240}- Präparat wird durch einen Szintillationsblitz (Abschnitt 4.3.) angezeigt, der über den startseitigen Photomultiplier PM1 beobachtet wird.Der Photomultiplier PM 2 registriert das verzögerte Stopsignal (Lumineszenz der ZnO(Cu) - Schicht). Die Photomultiplierpulse werden über constant-fraction-timing-Diskriminatoren (CFT) in zeitgerechte Einheitsimpulse umgewandelt.Die Ratemeter (Ortec 449) kontrollieren integral die jeweiligen Photonenströme.Die Zeitdifferenz zwischen Start - und Stopimpulsen wird im Zeit- Amplituden - Konverter (ZAK Ortec 437 A) in einen zeitproportionalen Spannungs -

wert umgesetzt .Diese Werte werden über einen Vielkanalanalysator mit 400 Kanälen (Frieseke und Höpfner) registriert. Die Daten können ausgegeben werden
a, numerisch über einen Drucker
b, graphisch über einen Schreiber
c, über eine Kathodenstrahlröhre.
Bei Thermopulsexperimenten wird die Startseite der Koinzidenzanordnung modifizert.Das Startsignal wird über einen Spannungsteiler vom Heizimpuls abgezweigt und auf einen CFT - Diskriminator gegeben.

Arbeitsweise des Zeit - Amplituden - Konverters:

Nach dem Auslösen des Meßzyklus durch ein Startsignal kann ein begrenztes Zeitintervall,die sog. Konversionszeit untersucht werden.Diese Konversionszeit entspricht dem maximal abgebbaren Spannungswert des ZAK und konnte im vorliegenden Fall eingestellt werden zwischen 50 ns und 80 µs (t_{konv}) Nach dem Auslösen des ZAK kann innerhalb der Konversionszeit nur das erste Stopsignal registriert werden.Weitere Stopsignale werden nicht registriert, der Rest der Konversionszeit nach dem ersten Stopsignal ist somit Totzeit.Ebenso werden weitere Startsignale, die in einen ausgelösten Meßzyklus fallen , nicht registriert.Die Erhöhung der Start - und Stopraten über $1/ t_{konv}$ (sec^{-1}) hinaus führt nur zu einer Erhöhung der Rate zufälliger Koinzidenzen (Rauschen).

Zwischen den Start - und Stopraten N_1, N_2 und den Raten N_c und N_c' der echten und zufälligen Koinzidenzen bestehen folgende Beziehungen:

$$(11) \quad N_c' = t_{konv} \left[(N_1 - N_c)N_2 - (N_2 - N_c)N_1 \right]$$

Für kleine Koinzidenzraten $N_c \ll N_1, N_2$ reduziert sich (11) zu

$$(12) \quad N_c' = 2\, t_{konv}\, N_1 N_2$$

Meistens wird jedoch nur die Gesamtkoinzidenzrate $N_{ges} = N_c + N_c'$ direkt gemessen. Die Rate echter Koinzidenzen N_c bestimmt sich hieraus wie folgt:

$$(13) \quad N_c = \left[N_{ges} - 2\, t_{konv} N_1 N_2 \right] / \left[1 - t_{konv}(N_1 + N_2) \right]$$

Aufgrund der Arbeitsweise des ZAK kann bei großen Stopraten im Vergleich zu den Startraten sogenanntes " pile up " auftreten. Ein bereits kurz nach dem Start eintreffendes Stopsignal wird mit größerer Wahrscheinlichkeit registriert als ein Stopsignal am Ende der Konversionszeit. In den einzelnen Kanälen wird statt der echten Ereignisrate N eine kleinere Rate $\bar{N}$ gemessen:

$$(14) \quad \bar{N} = N\, e^{-N_t t}$$

N_t ist hierbei die Ereignisrate im Zeitintervall 0 bis t.

Das unverzerrte Zeitspektrum kann auf verschiedene Weisen gewonnen werden. Neben der mathematischen Entfaltung des gemessenen Zeitspektrums unter Zugrundelegung von (14) kann auch der pile up -Effekt durch verschiedene Maßnahmen experimentell vermieden oder zumindest reduziert werden:

a, durch Verkleinerung des Beobachtungsraumwinkels und damit durch die Reduzierung der Stoprate

b, man vertauscht die Start- und die Stopseite der Anordnung und erhält so eine höhere Startrate. Diese Maßnahme ist allerdings nur bei kleinen Konversionszeiten anwendbar, wo entsprechende Verzögerungsglieder für die Signalübertragung zur Verfügung stehen.

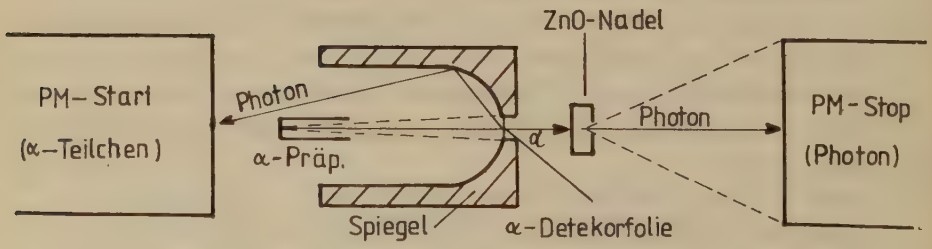
c, wird die hohe Stoprate durch Ereignisse in einem eng begrenzten Zeitraum verursacht, der nicht weiter von Interesse ist, so kann dieses Zeitintervall durch Einbau entsprechender Verzögerungsglieder auf Start - oder Stopseite außerhalb des Konversionszeitbereichs gelegt werden.

Bei all diesen Maßnahmen ist natürlich immer die übergeordnete Bedingung $N_1, N_2 < 1/t_{konv}$ zu erfüllen.

4.3. Die α- Kanone

Um zeitaufgelöste Messungen beim Beschuß von Kristallen mit α - Teilchen durchführen zu können, muß bei der Emission eines Teilchens aus dem Präparat ein Startsignal gewonnen werden, wobei der Energieverlust des Teilchens möglichst gering gehalten werden soll.Als Quelle der α- Teilchen dient ein Pu^{240} - Salz.Die emittierten Teilchen durchfliegen eine dünne Folie des Plastikszintillators NE 102 A, deren Massenbelegung kleiner als 1 mg/cm^2 ist. Hierbei werden Szintillationen angeregt, die als Startereignis dienen.Der Energieverlust der α- Teilchen liegt bei der genannten Massenbelegung unter 1 MeV (Energie der emittierten Teilchen 5,2 MeV).(37)
Um eine möglichst hohe Ausbeute von Szintillationsphotonen zu erhalten, wird die Folie in einer Spiegelanordnung aufgespannt (Abb. 17). Das gesammelte Licht wird durch einen Photomultiplier registriert.

Abb. 17 Anordnung für das Koinzidenzexperiment:
Beschuß einer ZnO - Nadel mit α- Teilchen (Pu^{240},5,2MeV)



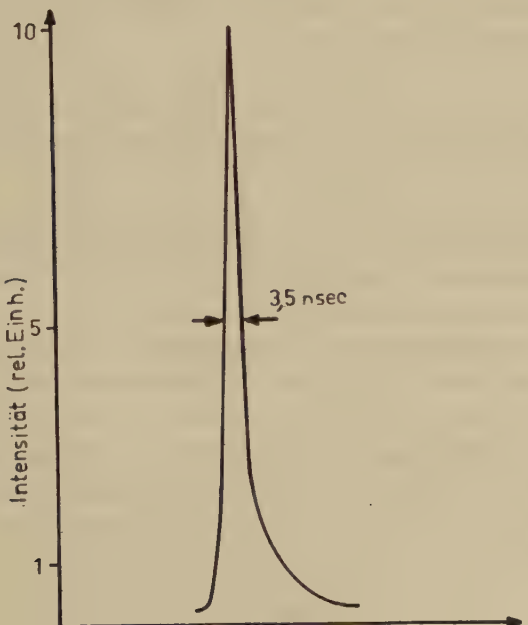
Um bei durchsichtigen Kristallen ein Übersprechen auf den stopseitigen Photomultiplier zu verhindern, wurden die verwendeten Szintillatorfolien verspiegelt (Bedampfen mit Aluminium).

Mit der beschriebenen Anordnung konnten die emittierten Teilchen zu 100% nachgewiesen werden. Dies ergab sich aus Vergleichstests mit einem NE 193 - Detektor (bei voller Absorption der Teilchenenergie). Die α - Kanone wurde an den Probenhalter geflanscht und zusammen mit diesem abgekühlt. Dadurch wurde eine Einstrahlung von IR auf die Probe vermieden. Die später beschriebenen Versuche wurden mit einer Beschußrate von $2 \cdot 10^3$ s^{-1} durchgeführt.

Herstellung der Szintillatorfolie:

NE 102 - Plastikszintillatormaterial wird in Benzol, Toluol oder anderen Aromaten aufgelöst. Durch Einstellen einer bestimmten Konzentration und der anschließenden Eindunstung auf einer Wasseroberfläche können Folien mit definierter Massenbelegung hergestellt werden.

Abb. 18 Zeitliches Verhalten der Szintillation einer NE 102 - Folie (1mg/cm^2) bei Beschuß mit 5,2 MeV α - Teilchen



Die geringe Asymmetrie der in Abb. 18 gezeigten Kurve wird durch ein unterschiedliches Zeitverhalten der Start- und Stopphotomultiplier verursacht (Koinzidenzmessung,bei der eine unverspiegelte Szintillatorfolie anstelle des Kristalls am Probenhalter eingebaut wurde).
Das Szintillationslicht weist ein spektrales Maximum bei 430 nm auf.

4.4. Die Thermopulsanordnung

4.4.1. Grundlagen,Präparation

Von den verschiedenen Phononenerzeugungsmethoden wurde die Thermopulsanordnung mit am eingehendsten untersucht und in der Literatur beschrieben.Da das Phononenemissionsverhalten dieser Methode weitgehend bekannt ist, bietet sie sich für Test - und Eichmessungen am bisher noch nicht quantitativ untersuchten ZnO(Cu) - Detektor an.Werden Thermopulsversuche und Beschuß mit α- Teilchen an gleichen Kristallproben durchgeführt, so können Rückschlüsse auf das beim Teilcheneinschlag erzeugte Phononenspektrum gezogen werden.

An dieser Stelle soll kurz zusammengefaßt werden , welche Größen bei der Anregung akustischer Phononen mittels Thermostoß eine Rolle spielen:

a, die Leistungsdichte (W/mm^2) des elektrischen Heizpulses bestimmt die Temperatur des Heizfilms und damit das emittierte Phononenspektrum.Bei Detektion mit ZnO(Cu) wird hierdurch die maximal entleerbare Traptiefe bestimmt.

b, Die Leistung des Heizpulses (bei gegebener Leistungsdichte) bestimmt den Phononenfluß durch die Detektorfläche und damit die Signalhöhe (im Falle des ZnO-Detektors die Lumineszenzrate)

c, der gesamte Energiegehalt (bei gegebener Leistung proportional zur Pulsdauer) bestimmt beim ZnO - Detektor den Lichtsummenverlust in den durch die Leistungsdichte erreichbaren Glowkurvenbereichen.

Bei der Auswahl des Materials für den Heizfilm muß beachtet werden,daß die Debyetemperatur des Metalls größer oder zumindest annähernd gleich der von ZnO ist, um den gesamten detektierbaren Spektralbereich ausschöpfen zu können.Die Debyetemperatur von ZnO beträgt ca. 410 K (54).

Die genannte Bedingung wird zwar von einer Reihe von Metallen erfüllt, wie z.B. Aluminium, Titan ,Nickel.Da der spezifische Widerstand hierbei stark temperaturabhängig ist,ist eine definierte Einstellung des Heizfilmwiderstandsauf 50 Ohm bei 5 K relativ schwierig.Es sei aber darauf hingewiesen, daß einige Versuche zur Bestimmung der Heizfilmtemperatur bei Thermopulsversuchen die Temperaturabhängigkeit des Filmwiderstands ausnützen (28).

In den meisten Fällen wird daher Konstantan als Heizfilmmaterial verwendet,dessen Debyetemperatur ca. 390 K beträgt. Die Konstantanschicht wurde im Hochvakuum bei ca. 10^{-7} Torr aufgedampft, die Schichtdicken wurden über einen Schwingquarz gemessen.Die zu bedampfenden Kristalle hatten eine Oberflächenplanität von ca. 1 µm.Die Form der Leiterbahen auf der Kristalloberfläche wurde durch Abdecken mit entsprechend geschnittenen Masken erreicht.Als Ausgangsmaterial für die Bedampfung wurde eine Legierung von Ni:Cu = 5:1 (Gewichtsverhältnis) verwendet, um infolge der unterschiedlichen Dampfdrücke auf dem Substrat eine Filmzusammensetzung entsprechend technischem Konstantan (Ni:Cu = 1:1) zu erhalten.Durch teilweises Abdecken der Leiterbahn mit Leitsilber wurde der Widerstand der Pulserschicht auf 50 Ohm abgestimmt.Die eigentliche Heizfilmfläche betrug durchschnittlich l x b = 1,5 x 1 mm^2,die Schichtdicke lag bei ca. 200 A. (Länge l,Breite b)

Abb. 19 Form der Leiterbahn des Heizfilms auf einer Kristallscheibe

4.4.2. Die Ansteuerung der Heizschicht

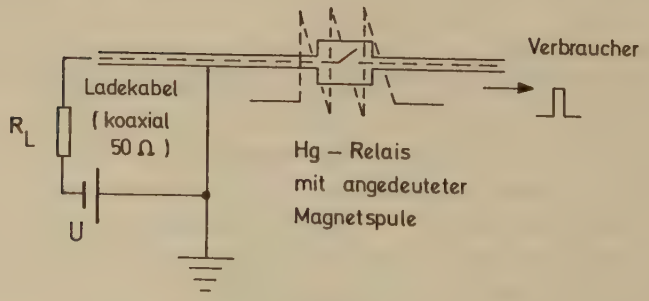
Die elektrischen Heizimpulse wurden folgendermaßen erzeugt:

a, durch einen Philips Pulsgenerator PM 5771.Es wurden Rechteckpulse von 10V Höhe über einer Impedanz von 50 Ohm abgegeben. (entspricht einer Leistung von 2 W).Die Anstiegszeit der Pulse ist kleiner 5 ns.Die Pulslängen sind frei wählbar (minimal 10 ns), ebenso das Tastverhältnis.

b, über eine einfache Transistorverstärkerschaltung (Ansteuerung durch obigen Pulsgenerator)Der Leistungsbereich konnte so auf über 200 W erweitert werden (100 V Pulshöhe über 50 Ohm).Jedoch verschlechtert sich das zeitliche Auflösungsvermögen, die Anstiegszeit der Pulse betrug minimal ca. 50 ns.

c, über einen Quecksilberpulser.Es konnten dadurch Pulsleistungen von über 800 W bei großer zeitlicher Schärfe (Pulsbreite unter 10 ns) erreicht werden.Der Nachteil dieser Methode liegt jedoch in der niedrigen Pulswiederholrate von ein - bis zweihundert Hertz.

Abb. 20:Prinzipschaltbild der Pulserzeugung über ein Quecksilberrelais



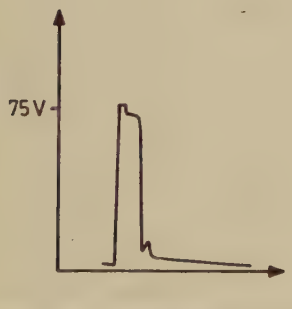
Das Ladekabel (50 Ohm koaxial) wird über einen hochohmigen Widerstand R_L (1 Megohm) auf das gewünschte Potential gelegt. Das Quecksilberrelais wird über eine Magnetspule mit Steuerimpulsen von 10 V und 5 ms Dauer geschaltet. Beim ersten Berühren der quecksilberbenetzten Kontakte im Relais wird das Ladekabel innerhalb von Bruchteilen einer Nanosekunde durchgeschaltet, der Puls läuft über ein 50 Ohm - Koaxialkabel zum Verbraucher (38).
Die Pulsdauer wird durch die Länge des Ladekabels bestimmt:

$$\text{Pulsbreite} = 2\ l\ t_s$$

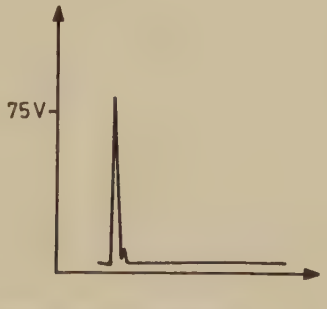
l ist die Kabellänge, t_s die Pulsausbreitungszeit in 1 Meter Kabel, im vorliegenden Fall betrug t_s 4,7 ns/m.

Die Pulshöhe beträgt U/2 , wenn U die Ladespannung ist.

Abb. 21 a,b Pulsformen bei Verwendung von Ladekabeln verschiedener Länge, U = 150 V



Länge des Ladekabels : 18,5 m
HB : 200 nsec



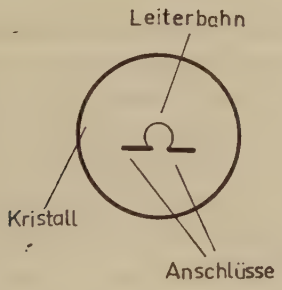
Länge des Ladekabels : 1 m
HB : < 15 nsec

4.5. Das supraleitende Bolometer

Bisher wurden keine Messungen durchgeführt, um die Detektoreigenschaften von ZnO(Cu) quantitativ zu erfassen.(1-7) Im Rahmen der vorliegenden Arbeit soll dieser Punkt unter - sucht werden.Hierzu sind insbesondere vergleichende Experi - mente nötig, die mit Hilfe bereits bekannter Detektions- methoden angestellt werden.
Zunächst soll als klassischer Testdetektor das supraleitende Bolometer verwendet werden.Es wurde in den Vierziger Jahren als IR - Detektor entwickelt.Es stellt im wesentlichen einen extrem temperaturempfindlichen Widerstand dar.Kühlt man ein Metall auf seine Sprungtemperatur ab, so erfolgt der Übergang vom normalleitenden Zustand in den supraleitenden nicht un - stetig.Vielmehr erfolgt der Übergang stetig in einem sehr kleinen Temperaturintervall ΔT von 10^{-3} K bis 10^{-2}K Breite , in gewissen Bereichen dieses Intervalls besteht sogar ein linearer Zusammenhang zwischen Temperatur und Widerstand (21). Dampft man eine sehr dünne Leiterbahn eines entsprechenden Metalls auf ein Substrat, dann genügt bei der Sprungtemperatur die Zufuhr einer sehr kleinen Energiemenge, um den Übergang erfolgen zu lassen.Die Energie kann z.B. als IR -Strahlung oder in Form von Pulsphononen übertragen werden.Die Phononen werden dabei infolge der Elektron - Phononen -Wechselwirkung sehr schnell thermalisiert (Zeitkonstanten von weniger als 10 ns infolge der Temperaturerhöhung verändert sich der Widerstand. Die Meßempfindlichkeit des Bolometers kann bestimmt werden aus der Wärmekapazität des Metallfilms bei der Sprungtempe - ratur und der Breite des Temperaturintervalls ΔT : Phononenströme mit einer Leistungsdichte von 10^{-12} W/cm^2 können detektiert werden.

Das supraleitende Bolometer arbeitet nicht energieselektiv, es spricht auch bei kleinen Phononenfrequenzen an (z.B. bei Ultraschallexperimenten mit $\nu = 10^9$Hz).Es soll in der vorliegenden Arbeit verwendet werden um das Zeitverhalten von Phononenpulsen bei ihrer Erzeugung und Ausbreitung zu studieren.Vergleiche mit dem im Terahertzbereich arbeitenden ZnO(Cu) - Detektor lassen sich nur insoweit ziehen , als bei Thermopulsexperimenten die Phononenemission über das Bolometer kontrolliert werden kann (Messung des Energieflusses) und über das Weissche Modell Rückschlüsse auf die spektrale Zusammensetzung des Phononenpulses gezogen werden können. Als Bolometermaterial wurde Blei verwendet, da die Sprungtemperatur von 7,2 K mit dem verwendeten Kryostaten bequem einzustellen ist.Über ballistische Phononenpulsexperimente mit Bleidetektoren wurde verschiedentlich berichtet (16).

Abb. 22 Form der Leiterbahn des supraleitenden Bleibolometers



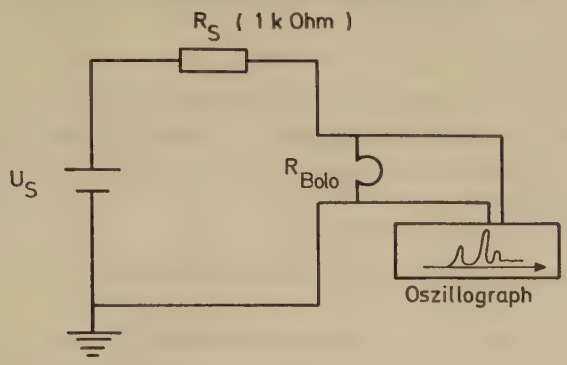
Das Metall wurde im Hochvakuum in Schichtdicken von 150 $\mu g/cm^2$ aufgedampft.Als Substratkristalle wurden nur Si - und ZnO -

Einkristalle verwendet.
Das Bleibolometer hatte folgende Eigenschaften:

Widerstand bei Zimmertemperatur: ca. 25 Ohm
Widerstand normal bei 7,2 K : ca. 1 Ohm
Breite des Temperaturintervalls für Übergang normallei - tend - supraleitend : ca 0,02 K.
Die Breite des Sprungintervalls wurde über die Bestimmung des Heliumdampfdruckes im Vorratsgefäß abgeschätzt.
Über den Heizwiderstand HW wurde die Probentemperatur knapp oberhalb der Sprungtemperatur des Bolometers eingestellt. Wird nun über dem Heliumvorrat abgepumpt, so erfolgt der Übergang zwischen zwei Druckwerten, aus denen die entsprechende Temperaturdifferenz ermittelt werden kann (55).Infolge des Temperaturgradienten vom Vorratsgefäß zum Heizwiderstand ist die Temperaturänderung am Ort des Kristalls (mit Bolometer) geringer als die im Heliumtank.Der oben genannte Wert von 0,02 K stellt also eine obere Grenze für ΔT dar.

Gewinnung des Bolometersignals:
Die Sprungtemperatur wurde grob über den Heizwiderstand HW eingestellt.Zur Feineinstellung wurde die Wiederholfrequenz am Heizpulsgenerator verändert.Durch die Dissipation der Pulsphononen wurde die Probe erwärmt, die Leistungszufuhr war so auf 10^{-5}W genau einzustellen.Ein Temperaturwert konnte ca. 10 s stabil gehalten werden, danach driftete die Temperatur zu höheren Werten ab.Da zur Aufzeichnung eines gut ablesbaren Signals auf dem Speicheroszillographen lediglich eine Meßzeit von 1 s nötig war, genügte diese Stabilität vollkommen.Eine Langzeitstabilisierung über eine Frequenzregelung der Heizpulse dürfte einfach zu bauen sein.

Abb. 23 Schaltung des Bolometers



Über den Lastwiderstand R_L ($\gg R_{Bolo}$) wird ein eingeprägter Strom bestimmt, sodaß eine Änderung des Bolometerwiderstands direkt in einen Spannungsimpuls umgesetzt wird.

4.6. Die ZnO - Detektorschichten

ZnO kann im Hochvakuum durch thermisches Verdampfen nicht auf ein Substrat aufgedampft werden, da es beim Erhitzen dissoziiert und sich lediglich ein metallischer Zinkspiegel niederschlägt. Eine Möglichkeit zur Herstellung epitaktischer ZnO - Schichten bietet das reaktive Sputtern in verdünnter Sauerstoffatmosphäre (40). Jedoch stand eine solche Anlage nicht zur Verfügung.

Die ZnO - Schichten wurden daher präpariert

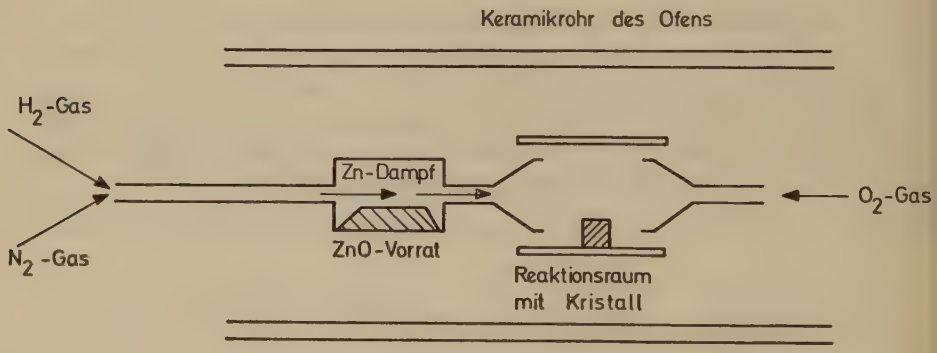
a, durch das Transportreaktionsverfahren (41)

b, durch oberflächliches Einsintern von ZnO - Pulver in den Substratkristall

Diese Methoden haben gegenüber den in den Arbeiten (1-7) beschriebenen Präparationen den Vorteil, daß die ZnO -Schichten ohne Bindemittel (z.B. die Komplexverbindung Zn(OH)Cl) angekoppelt werden.

Über das Transportreaktionsverfahren (41) wurden nur die Si - Kristalle beschichtet, da nur diese die auftretenden hohen Temperaturen von ca. 1000 °C aushalten und weitgehend inert sind gegen Sauerstoff.

Abb. 25 Schema des Dampfreaktionsverfahrens (41)



Über einen erhitzten ZnO - Vorrat (Material der Firma Stamm) wird ein Gemisch von N_2:H_2 = 10:1 (Volumen) geleitet und so das Oxid zum Metall reduziert. Infolge der hohen Temperatur von 1000°C verdampft das Zink und wird durch den Gasstrom in den Reaktionsraum transportiert. Der Stickstoff dient lediglich zur Verdünnung, um die Reaktion besser kontrollieren zu können:

$$ZnO + H_2 \rightleftharpoons Zn + H_2O$$

Im Reaktionsraum reagiert der Zinkdampf mit eingeleitetem Sauerstoff zu ZnO, das sich auf den Gefäßwänden und den eingebrachten Kristallen niederschlägt.

Bei Gasdurchflußmengen von ca. 2l des N_2,H_2 Gemisches und einem Volumen des Reaktionsraumes von ca. 50 cm^3 wuchsen auf den Si - Kristallen kleine ZnO - Nadeln von einigen Millimetern Länge und einer Dicke von wenigen Zehntel Milli - metern.Durch anschließendes Abschleifen dieser Schicht konnte die gewünschte Dicke des ZnO - Detektors von ca. 1/10 mm eingestellt werden.
Eine dieser ZnO -beschichteten Si -Scheiben wurden von R.Wengert in seiner Arbeit (2) verwendet, auch an ihr konnte er seine Ergebnisse bestätigen.

Die LiF - und KCL - Kristalle mit einer Schmelztemperatur unter 1000°C wurden durch Einsintern von ZnO - Pulver (Material der Firma Stamm) beschichtet.Das Pulver wird durch einen Stempel auf die Kristalloberfläche gepreßt und diese Anordnung 30 Minuten lang bei ca. 80% der Schmelztemperatur des Substrat-kristalls getempert.Danach war die oberste Lage der ZnO - Kör-ner in den Kristall eingesintert.

Die so präparierten ZnO - Schichten wurden in Glowkurven - messungen auf die gewünschten flachen Haftstellen untersucht. In diesem Zusammenhang sei Herrn R.Wengert für die Durch - führung einiger dieser Messungen mit Hilfe seiner Glowkur-venautomatik gedankt.Da Kupfer als natürliche Verunreini - gung in ZnO enthalten ist, bereitete die entsprechende Dotierung zu ZnO(Cu) kein Problem.Beim Transportreaktions - verfahren kann darüber hinaus durch Einbringen entsprechender Metalloxide auch eine gezielte Dotierung vorgenommen werden.

4.7. Die verwendeten Proben

a, nichtlumineszierende Kristalle:
Die ZnO(Cu) -Schicht mußte hierbei über die in Abschnitt 4.6. beschriebenen Methoden aufpräpariert werden.Hierbei treten die in 2.2. diskutierten Probleme der akustischen Fehlanpassung auf.

Silizium: Verwendet wurden Si -Scheiben der Firma Wacker, die als Ausgangsmaterial für Halbleitertechnologie verwendet werden.Die Kristalle weisen daher große Reinheit und Fehler - freiheit auf.Die Laufstrecke der Phononen lag in [111] Richtung (Zylinderachse).Siliziumkristalle wurden auch in den früheren Arbeiten (1-7) studiert und bieten sich daher zu Vergleichs - zwecken an.Natürliches Silizium kommt mit folgender Isotopen - verteilung vor:
Massenzahl 28: 92,21 % ; 29 : 4,7 % ; 30: 3,09 %

Lithiumfluorid: LiF - Einkristalle wurden ebenfalls bereits in den früheren Arbeiten verwendet.An LiF - Kristallen wurde Phononenfokussierung beobachtet (19-21).Die Versuche wurden in einer Thermopuls - Bolometeranordnung durchgeführt, somit liegen bereits Ergebnisse von Messungen mit konventio - nellen Detektoren vor.In der vorliegenden Arbeit wurde die Pulsausbreitung in [100]- Richtung studiert.(Hersteller : Fa. Halle , Berlin)
Isotopenverteilung:
Li Massenzahl 6: 7,9 % ; 7 : 92,1 %
F : isotopenrein

Kaliumchlorid: KCl zeigt Phononenfokussierung (19-21), Ergebnisse von Phononenpulsmessungen mit Thermopuls - Bolometer- anordnung werden in der Literatur beschrieben.Studiert wurde die Phononenausbreitung in [100] Richtung.(Hersteller: Fa. Halle Berlin)
Isotopenverteilung:
K Massenzahl 39: 93,4 %; 40: 0,01 %, 41 : 6,6 %
Cl " 35: 75 % ; 37: 25 %

b, lumineszierende Kristalle:
Es ist naheliegend, die Phononenausbreitung in ZnO - Einkristallen zu studieren, wobei durch UV -Anregung bestimmte Bereiche des Kristalls als akustisch perfekt angekoppelte Detektoren verwendet werden.

Die ZnO - Einkristalle wurden alle von Dr.H.Helbig über das in 4.6. beschriebene Transportreaktionsverfahren gezüchtet. Einige der Proben wurden von Herrn R.Kammermeier bei seinen IRS - Messungen (33) verwendet,sodaß von diesen Kristallen die Trapverteilungen sehr gut bekannt waren.Die übrigen Proben wurden durch Glowkurvenmessungen auf ihren Gehalt an flachen Haftstellen untersucht.Acht von zehn Proben enthielten flache Haftstellen, diese Kristalle wurden dann für die weiteren Messungen verwendet.
Die Kristalle lagen als Nadeln vor,es wurde die Phononenausbreitung sowohl senkrecht als auch parallel zur c - Achse untersucht.
Isotopenverteilung in ZnO:
Zn Massenzahl 64: 48,9 %; 66 : 27,8 %; 67 : 4,2 %; 68: 18,6%; 70: 0,5 %;
O 16: 99,8 %; 18: 0,2 %;

Stoffwerte der verwendeten Substratkristalle

	Dichte g/cm^3	Debyetemp/ K	ν_{max} / E_{max} THz / meV	Schallgeschw. 10^5cm/s
Si	2,33	658	13,7 / 56	long: 9,4
(Lit.: 19,59)				trans:5,11 in [111]
LiF	2,64	730	15,2 / 62	trans: 4,96 in [100]
(Lit.: 16,19 - 21)				
KCl	1,98	233	4,8 / 19	long: 4,8 in [100]
(Lit.: 19 - 21)				
ZnO	5,66	410	8,4 / 35	long: 6,2
				trans: 2,8
(Lit.: 49 - 54)				

Bei LiF und KCl tritt Phononenfokussierung auf. Es wird daher nur die intensivere Komponente bei den Werten der Schallgeschwindigkeiten berücksichtigt.

Stoffwerte von Konstantan (Thermopulser): (56)

Dichte	Debyetemp.	ν_{max}	E_{max}	Schallgeschw.
8,8, g/cm^3	390 K	8,1 THz	33 meV	long 5,24 10^5cm/s
				trans 2,64 10^5cm/s

Stoffwerte von Blei (Bolometer) : (57,58)

11,34 g/cm^3	94 K	1,5 THz	8 meV	long 2,05 10^5cm/s
				trans 0,71 10^5cm/s

Aus den genannten Stoffwerten lassen sich über die Weissche Theorie die Transmissions -,bzw. die Emissivitätskoeffizienten für senkrechte Inzidenz auf die Grenzschichten zwischen den verschiedenen Medien berechnen.

Medium 1	Medium 0	T_l	T_t	e_l^{10}	e_t^{10}
Konst.	Si	0,87	0.9	0.27	0.23
Konst.	LiF	-	0.9	-	0.25
Konst.	KCl	0.57	-	0.67	-
Konst.	ZnO	0.98	0.96	0.7	0.85

Für das System Kristall - Detektor ergeben sich folgende Werte

Medium 1	Medium 0	T_l	T_t
Si	ZnO	0.94	0.98
LiF	ZnO	-	0.99
KCl	ZnO	0.67	-
ZnO	Pb	0.96	0.89
Si	Pb	0.99	0.97

Zum Vergleich seien die Werte für das System Konstantan auf Al_2O_3 angeführt:(realisiert im Renkschen Rubindetektor)
$T_l = 0.99$ $T_t = 0.99$ $e_l^{10} = 0.22$ $e_t^{10} = 0.17$

5. Meßergebnisse

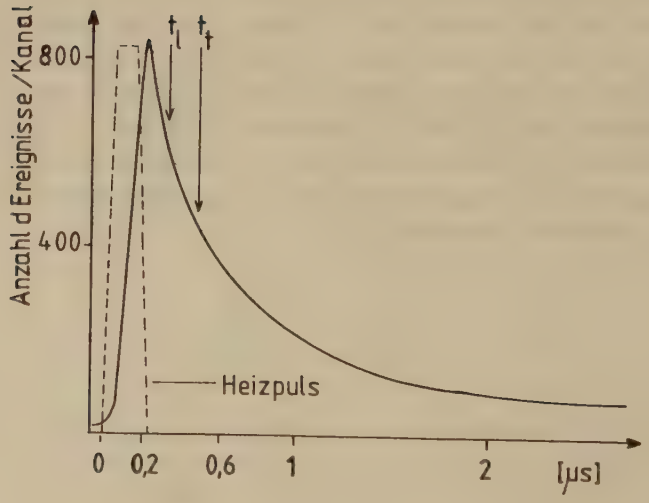
5.1. Messungen an nichtlumineszierenden Kristallen mit aufpräparierter ZnO - Schicht

5.1.1. Thermopulsmessungen

Die untersuchten Si-,KCl- und LiF- Kristalle wurden über die in Abschnitt 4.6. beschriebenen Methoden mit einer polykristal - linen ZnO - Schicht versehen.Anschließend wurden sie auf ihren Gehalt an flachen Haftstellen untersucht.Beim Einsatz als Detektor wurde die Schicht mit UV - Strahlung (λ = 365 nm) bis zur Sättigung innerhalb weniger Minuten angeregt. Kurzzeitiges Bestrahlen von wenigen Sekunden Dauer führte zwar zu einem rascheren Abklingen des Nachleuchtens auf niedere Photonenrauschraten (1,2),jedoch war auch die Lumineszenzausbeute geringer.
In den verschiedenen gezeigten Laufzeitdiagrammen sind die Ausbreitungszeiten der ballistisch propagierenden Moden (t_l longitudinal , t_t transversal) eingezeichnet.Dies soll lediglich als Anhaltspunkt für die zeitlichen Relationen der beschriebenen Lumineszenzeffekte dienen.Infolge des Iso - topengemischs in den Kristallen (siehe 4.7.) ist eine diffuse Ausbreitung der Teraghertzphononen zu erwarten (Rayleighstreu - ung).Alle Proben wurden u.a. auch mit der maximalen Konver - sionszeiteinstellung von 80 µs vermessen , um auch Langzeiteffekte infolge gestörter Phononenausbreitung zu erfassen.Wenn kleinere Zeitbereiche abgebildet sind, so wurden eben darüber hinaus keine Effekte gefunden.

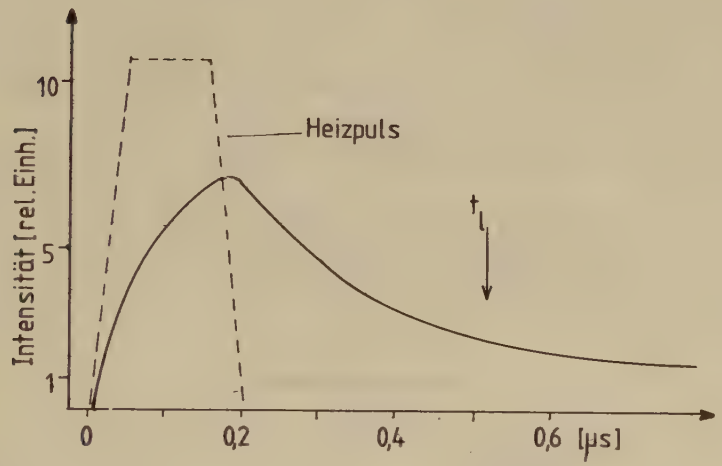
Messungen an Siliziumkristallen:
Thermopulsversuche in Koinzidenzanordnung wurden an Kristall - proben von 0,5 bis 8 mm Dicke durchgeführt.Pulsleistungen bis ca. 100 Watt wurden abgegeben, höhere Pulsleistungen führten zu einer allmählichen Zerstörung der Pulserschicht.Die Pulswiederholfrequenzen lagen zwischen 10^3 s^{-1} und $10^4 s^{-1}$.
Die maximal verwendbare Pulsfolge hing von der jeweiligen Pulsleistung ab,sie mußte hinreichend niedrig sein, um ein Aufheizen der Probe zu verhindern.
Abbildung 25 zeigt das für alle Fälle typische Ergebnis des Zeitspektrums,gewonnen über die Lumineszenzereignisse am ZnO - Detektor.

Abb. 25 : Koinzidenzanordnung mit t_{konv} = 3 µs, Abgabe von $2 \cdot 10^7$ Heizpulsen der Leistung 50 W (Leistungsdichte ca. 30 W/mm^2) auf einen Siliziumkristall von 2 mm Dicke.Die Lage des Heizpulses ist gestrichelt eingezeichnet.



Koinzidenzmessungen an KCl: Die verwendeten Kristalle wiesen eine Dicke von 2 und 4 mm auf.Bei den Thermopuls - messungen zeigte sich ein ähnliches Bild wie bei den Siliziumkristallen (Abb. 26)

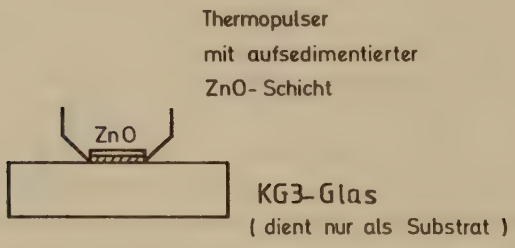
Abb. 26 Thermopulsmessung an 2 mm dickem KCl - Kristall mit Pulsleistungen von ca. 30 W,(Leistungsdichte ca. 20 W/mm^2)



Thermopulsversuche wurden auch an LiF - Kristallen von 2mm und 4 mm Dicke durchgeführt.Eine prompte Lumineszenz, wie in Abb. 25 und 26 gezeigt wird, konnte nur in einem Fall beobachtet werden.Die Ausbeute war jedoch um Größenord - nungen kleiner als bei Si und KCl.Sie konnte nur bei sehr hohen Pulsleistungen von nahezu 100 W beobachtet werden.

Die Thermopulsmessungen an Si - ,KCl - und LiF - Einkristal - len zeigten in keinem Fall verzögerte Lumineszenz, die auf ballistisch oder diffus propagierende Pulsphononen zurückzu - führen wäre.Auch bei Abgabe einzelner Heizimpulse mit Lei - stungen von über 100 W und Pulsdauern von einigen µs zeigten keinerlei Effekt bei Beobachtung über eine Photomultiplier - anordnung (vgl. Abb. 7 - 9).
Auch eine Wiederholung der Experimente mit aufsedimentierten ZnO - Schichten (Präparationsmethode aus (2)) zeigte nur die bereits beschriebenen prompten Lumineszenzen.Selbst wenn sie ZnO - Schicht direkt auf die Thermopulserschicht aufge - bracht wird, zeigt sich bei Pulsleistungen von 50 W und Puls - dauern bis zu 50 µs außer der prompten Lumineszenz kein weiterer Effekt (bei identischem ZnO -Ausgangsmaterial).

Abb. 27 Testanordnung zur Phononendetektion, die ZnO - Schicht ist direkt auf den Thermo - pulserfilm aufgebracht.



Vergrößerte man die Pulsdauern bei den jeweiligen Experi - menten über einen bestimmten Wert hinaus (typischerweise 100 µs bei Pulsleistungen von 50 W),so setzte sehr intensive Lumineszenz ein, die ohne weiteres über eine Oszillographen - Photomultiplieranordnung zu beobachten war (die exakten Pulsdauer hingen von den Probendimensionen ab).

Es handelt sich hierbei um normale Thermolumineszenz.
Zum einen konnte am Probenhalter eine Temperaturerhöhung bis zu 1 K als Folge der Heizpulse beobachtet werden , d.h. die Erwärmung des Kristalls liegt sicher höher , womit dann eine normale Glowkurve gefahren wird.Zum anderen widerspricht das schwellenhafte Einsetzen der Lumineszenz ab einer gewissen Pulsdauer einer Stimulation durch Terahertzphononen aus dem Puls: Behält man nämlich die Leistungsdichte bei und reduziert lediglich die Heizpulsdauer, so müßte die Lumineszenzausbeute linear abnehmen mit der Pulslänge.Ein weiteres Indiz für reine Thermolumineszenz ist das schwellenhafte Einsetzen der Lumineszenz bei Abgabe von Heizpulsfolgen ab einer bestimmten Pulswiederholfrequenz (Pulsdauern typisch 100 ns).
Auch hier müßte die Lumineszenzausbeute proportional zur Wiederholfrequenz variieren, wenn die Ursache Terahertzphononen aus dem Phononenpuls wären.
Es sei ausdrücklich darauf hingewiesen, daß sich also bereits aus der integralen Bestimmung der auftretenden Ausbeuten Thermolumineszenz und phononenstimulierte Lumineszenz unterscheiden lassen.

Die als Folge der Thermopulse auftretende prompte Lumineszenz zeigte in allen Fällen folgendes Verhalten:

a, die Lumineszenz setzt prompt mit dem Beginn des Heizpulses ein.

b, die zeitliche Lage der Lumineszenz ist unabhängig von der Dicke der IR - transparenten Kristalle

c, eine Veränderung der Detektorfläche beeinflußte nicht das Zeitverhalten der Lumineszenz (insbesondere keine Verbreiterung bei 2π - Geometrie an dünnen Kristallproben)

d, eine Erhöhung der Heizpulsleistung führt zu größeren Lumineszenzausbeuten,jedoch nicht zu einer Änderung des Zeitverhaltens.

f, der Anregungsmodus mit UV -Strahlung (einige s bis zu mehreren min) hatte keinen Einfluß auf das Zeitverhalten, ebenso konnte keine Auswirkung der Wahl des Meßbeginns (Minuten bis Stunden) nach der Anregung festgestellt werden.Es änderte sich lediglich das Signal - Rausch - Verhältnis.

f, der Effekt war beobachtbar bis zu einer Probentemperatur von ca. 15 K.

5.1.2. Einfluß der infrarot-stimulierten Lumineszenz (IRS)

In Abschnitt 2.3. wurde bereits auf die Stimulierbarkeit flacher Löcherhaftstellen in ZnO durch Infrarotstrahlung bis zu Wellenlängen von 30 µm hingewiesen. Dieser Prozeß ist sehr effektiv mit Quantenausbeuten von einigen Prozent (32,33, 35,36). Es lag daher die Vermutung nahe, daß die im vorigen Abschnitt beschriebenen Lumineszenzen auf die vom erwärmten Thermopulser emittierte IR - Strahlung zurückzuführen ist. Mit dieser Annahme lassen sich die Punkte a, bis f, des vorigen Abschnitts über das Verhalten der Lumineszenz erklären. Diese These wird darüber hinaus gestützt durch folgende Beob - achtungen:

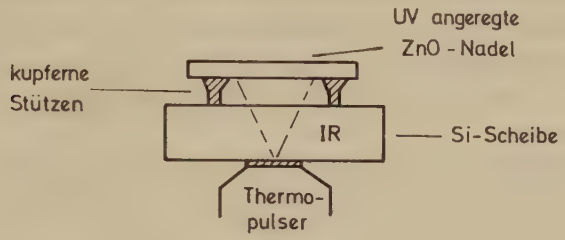
a, die Lumineszenz ist gut beobachtbar bei den IR - transparenten Kristallen Si und KCl, nicht (oder mit wesentlich geringeren Ausbeuten) an LiF - Kristallen.
Die Absorption von IR setzt bei Si und KCl erst bei Wellen - längen von 20 µm ein, bei LiF dagegen bereits bei 9 µm.

b, das Abklingen der Lumineszenz von einigen hundert Nano - sekunden Dauer entspricht exakt dem Nachleuchtverhalten der IRS (35). Der Anstieg der Lumineszenz über die Breite des Thermopulses wird ebenfalls durch die endliche Lebens - dauer des Zwischenniveaus am Cu^+-Zentrum hervorgerufen.

c, man beobachtet eine geringe Maximumsverschiebung der Lumineszenz gegenüber dem anregenden Thermopuls. Eine solche Verschiebung wird ebenfalls bei IRS beobachtet. Sie wird als Diffusionszeit erklärt, die die befreiten Löcher benötigen, um zu einem Cu^+ - Zentrum zu gelangen. (Haftstellen und Cu^+ - Zentren können nicht beliebig benachbart sein). (33,35). Solche Maximumsverschiebungen mit wesentlich größeren Diffusionszeiten werden z.B. auch an GaP beobachtet. (61)

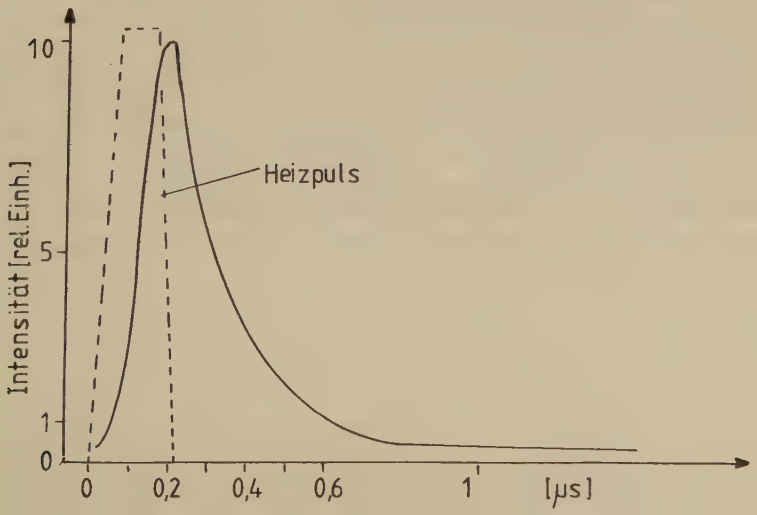
Der experimentelle Nachweis der IRS als Folge aufgeheizter Thermopulsschichten wird über folgende Anordnung geführt:

Abb. 28 : Nachweis der IRS durch den erwärmten Thermopulser durch räumliche Trennung des ZnO - Detektors vom Substratkristall mit Heizfilm



Es wird ein Thermopulsexperiment in Koinzidenzanordnung durchgeführt, wobei jedoch ein ZnO - Nadel räumlich getrennt über einen IR -transparenten Substratkristall (hier Si) mit Heizfilm montiert wird.

Abb. 29 IRS durch Thermopulsschicht bei räumlicher Trennung ZnO - Detektor vom Substrat



Es trat die in Abb. 29 gezeigte typische Lumineszenz auf, die vollkommen den prompten Lumineszenzen aus Abschnitt 5.1.1. glich, womit dieser Effekt als IRS identifiziert ist.Es besteht noch die theoretische Möglichkeit,daß die Stimulation durch das mit dem Heizpuls verbundenen elektrischen Streufeld hervorgerufen wird (die Feldstärken dürften allerdings zu gering sein).Diese Elektrophotolumineszenz konnte jedoch durch ein analoges Experiment mit einem IR - undurchlässigen KG 3 - Glas ausgeschlossen werden, hierbei trat keine Lumineszenz auf.

Abschätzung ~~der~~ mit der IR -Emission des Thermopulsers verbundenen Stimulationslichtraten des ZnO - Detektors:

Der durch den elektrischen Heizpuls erwärmte Metallfilm emittiert Photonen.Geht man von der Planckschen Strahlungsformel aus, so ergibt sich für einen Schwarzen Strahler der Temperatur 25 K (kT = 2,15 meV) eine Emissionsrate von 10^{13} IR - Quanten / m^2,s,sterad im Spektralbereich von λ = 15 μm bis 25 μm. (60).
Bei den Thermopulsversuchen lagen folgende Meßbedingungen vor:

Fläche des Thermopulsers: 1,5 mm^2,
Anzahl der abgegebenen Thermopulse
während des Koinzidenzexperiments: 10^7
Pulsdauern : 100 ns
Raumwinkel Quelle - Detektor: 2π
(bei dünnen Kristallen)

Hieraus ergibt sich eine Abstrahlung von ca.10^8 IR-Quanten (im Bereich λ = 15 μm bis 30 μm) auf die ZnO - Schicht.

Die Rate der registrierten Ereignisse wird wie folgt abgeschätzt:

Quantenausbeute der IRS : 1%
Raumwinkel,unter dem die
ZnO - Schicht vom Multiplier beobachtet wird : 1 sterad
Quantenausbeute des Photomultipliers: 5 %
Nimmt man eine isotrope Abstrahlung des Lumineszenzlichts in den Raumwinkel 2π an,so werden in der Größenordnung 10^4 Quanten im Laufe der Messung registriert.Diese Abschätzung stimmt mit den Ergebnissen aus den Koinzidenzmessungen überein.

Die Abstrahlung von IR - Quanten durch Thermopulserschichten wird begünstigt bei schlechter Ankopplung des Metallfilms an das Substrat:durch den behinderten Energieübertritt wird der Metallfilm stark erhitzt,(z.T. über 100 K (28)) auch bei relativ geringen Heizleistungen.Die damit verbundene starke IRS konnte z.B. kurz vor der Zerstörung einer Heizschicht durch zu intensive Heizpulse beobachtet werden.

Nachweisgrenzen für die phononenstimulierte Lumineszenz:

Im Abschnitt 2.2. wurde bereits darauf hingewiesen, daß bei einem Thermopulsexperiment die Heizenergie zum größten Teil als Phononen abgestrahlt wird (Faktor 10^{10} gegenüber der in Form von Photonen abgegebenen Energie).Dennoch konnte in keinem Fall im Rahmen der Meßgenauigkeit Lumineszenz beob - achtet werden, die auf die Entleerung von Löchertraps durch Terahertzphononen aus dem Phononenpuls zurückzuführen wären. Es konnte jedoch IRS gemessen werden, was ein weiterer Hinweis auf die Existenz flacher Haftstellen in der ZnO - Schicht ist.

Die Meßgenauigkeit bei der verwendeten Koinzidenzanordnung ergibt sich folgendermaßen:
Sei N die Anzahl der Ereignisse/ Kanal, so ist $\sqrt{N}$ die statistische Schwankung in dieser Messung.
t_e sei das Zeitintervall, in das die erwarteten Ereignisse (phononenstimulierte Lumineszenz) fallen.
Bei einer Konversionszeit t_{konv} und 400 Kanälen im VKA ist

$400\ t_e/t_{konv} = A$ die Anzahl der Kanäle, in die die Lumineszenzereignisse eingezählt werden.

Ist kein Effekt festzustellen, so heißt das, daß die Anzahl der echten Ereignisse kleiner ist als $A\sqrt{N}$ (wenn man keine näheren Aussagen über das zeitliche Verhalten der Lumineszenz machen kann).

Die Thermopulsmessungen wurden mit folgenden Einstellungen vorgenommen :

Startrate N_1 (Thermopulsrate) : $10^4\ s^{-1}$
Stoprate N_2 (Rate d. Lumineszenzphotonen) : $10^3\ s^{-1}$
Konversionszeit t_{konv} : 80 µs
Meßdauer : 10^3s

Die Rate zufälliger Koinzidenzen

$$N_c' = 2\ t_{konv} N_1 N_2$$

ergibt sich zu $1{,}6 \cdot 10^3\ s^{-1}$
Nach einer Meßdauer von 10^3s werden $4 \cdot 10^3$ zufällige Ereignisse in jeden Kanal eingezählt.

Als Zeitbereich für die erwartete phononenstimulierte Lumineszenz wird das Intervall zwischen 1 μs und 5 μs angenommen (Messung an einem 2 mm dicken Si - Kristall).Diese Annahme ist gerechtfertigt durch die später beschriebenen Bolometermessungen (ebenfalls an Si -Kristallen), die in dem genannten Zeitintervall diffuse Phononenausbreitung zeigen. (Abschnitt 5.1.4.).In diesem Zeitbereich ist das Nachleuchten der IRS - Lumineszenz bereits weitgehend abgeklungen, sodaß der Hauptbeitrag zu den in die einzelnen Kanäle eingezählten Ereignisse vom Rauschen stammt d.h. $N = 4 \cdot 10^3$ Ereignisse/Kanal. Somit ergibt sich

$$A \sqrt{N} \approx 1300 \text{ Ereignisse}$$

und die Quantenausbeute

$$n_{phot} / n_{emit.phon} = 10^{-17}$$

bei ca. 10^{20} im Verlauf des Experiments emittierten Terahertzphononen.
Die genannte Anzahl emittierter Terahertzphononen ergibt sich aus dem Weisschen Modell:
Thermopulsleistungsdichte : 50 W/mm^2,L
Pulsdauer:100 ns , D
Gesamtzahl der abgegebenen Pulse : 10^7,Z
Thermopulsfläche : 1,5 mm^2 , F
spektrale Strahlungsleistung im THz - Bereich bei der genannten Leistungsdichte : ca. 10^{-13} W/mm^2Hz (Abb.3) K
Bandbreite des ZnO - Detektors : ca. $5 \cdot 10^{12}$ Hz B

Die in Form von Terahertzphononen abgestrahlte Energie E :

$$E = K \cdot B \cdot F \cdot Z \cdot D \approx 0,7 \text{ Ws} \triangleq 10^{20} \text{ THz-Phononen.}$$

Von der Heizpulsleistung wird nur ca. 1% in Terahertzphononen umgesetzt.

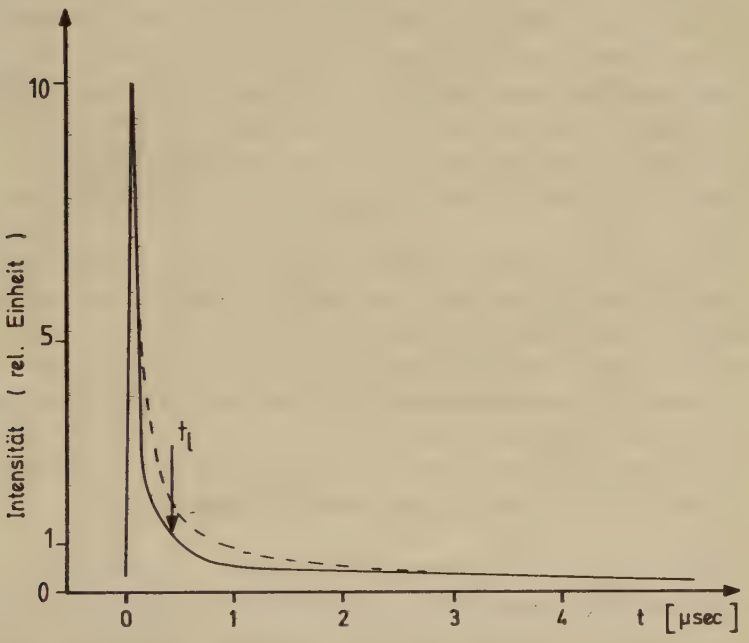
5.1.3. Beschuß von nichtlumineszierenden Kristallen mit α- Teilchen, Phononendetektion durch ZnO

Der wesentliche Unterschied vom Standpukt der Phononenpro - duktion zwischen den Thermopulsversuchen und dem Beschuß von Kristallen mit Teilchen liegt im " perfect match " der Quelle (Beschußort im Kristall) und dem Phononenleiter (dem restlichen " kalten"Kristall).Der Kristall wird im Bereich des Einschlagsortes (Kanal ionisierter Materie von ca. 10 µm Länge und 1 µm Durchmesser) stark aufgeheizt (mehrere hundert K).Eine Abstrahlung bevorzugt hochfrequen - ter Phononen erscheint daher möglich, es ist jedoch zu bezwei - feln, ob dies in ballistischer Form geschieht (wie in (1- 7) angenommen).Am Beschußort werden Phononen mit verschiedenen Richtungen der k -Vektoren angeregt,sodaß Umklappprozesse auftreten.Es wird sich daher eine Phononenwolke diffus ausbreiten, in der hochenergetische Phononen in niederenergetische zer - fallen,letztere können dann ballistisch propagieren. Parallel zur genannten Phononenproduktion treten weitere dissipative Prozesse auf, in die die Teilchenenergie fließt, so z.B. permanente Gitterschäden.Die Aufklärung solcher Prozesse ist mit eine Aufgabe dieser Untersuchungen.

Die Beschußmethode wurde an verschieden dicken Si,KCl und LiF-Kristallen angewendet.Die Beschußrate lag bei $2 \cdot 10^3$ Teilch./s.

Bei den durchsichtigen KCl- und LiF - Kristallen wurde nur prompte Lichtemission beobachtet.Es handelt sich dabei um Szintillationen der Substratkristalle beim Einschlag der Teilchen.Eine zu den Teilcheneinschlägen korrelierte Lumi- neszenz der ZnO - Schicht konnte nicht gemessen werden. Bei den undurchsichtigen Si - Kristallen wurden auch keine prompten Szintillationen festgestellt.

Abb. 30 : Zeitspektrum einer Koinzidenzmessung:
Beschuß eines 2 mm dicken KCl - Kristalls
mit 5,2 MeVα- Teilchen bei 6 K,ZnO -Schicht
nicht mit UV -Strahlung angeregt.
gestrichelt: Aufnahme bei 77 K



Eine zusätzliche UV - Anregung der ZnO - Schicht veränderte das gezeigte Zeitspektrum nicht.
Aufgrund der Koinzidenzraten ergibt sich eine geringere Ausbeute an phononenstimulierter Lumineszenz als 10^{-4} Lumineszenzphotonen/α - Teilchen.

5.1.4. Thermopulsmessungen an Si - Kristallen,Phononen - detektion durch das supraleitende Bolometer

Die Ergebnisse der bisher durchgeführten Messungen wider - sprechen den früheren Arbeiten von N.Riehl und Mitarbeitern. Weder die Ergebnisse der Laufzeitmessungen noch die Lumines - zenzraten (wie sie sich aus den Glowkurvendifferenzen ergeben) konnten reproduziert werden.Zur Aufklärung dieses Sachverhalts liegt es nahe, die Messungen an ZnO - Einkristal - len zu wiederholen,da hier " perfect match " zwischen Phononenleiter und Detektor vorliegt (Abschnitt 5.2.).

In diesem Kapitel werden Testmessungen an Si - Kristallen mit Phononendetektion über das supraleitende Bolometer be - schrieben , mit denen überprüft werden sollte:

a, ob die Präparation der Heizpulsschicht zu einer hin - reichend guten akustischen Kopplung des Metallfilms an den Substratkristall führt.

b, ob die verwendeten Proben genügend rein und ungestört sind, um die Phononenausbreitung nicht zu behindern.

Abb. 30 Thermopulsmessungen an einem 4 mm dicken Si - Kristall,Laufstrecke der Phononen in [111] Richtung, Signal als Folge eines einzigen Thermopulses von 2 W Leistung,Heizpulsdauer 80 ns,Detektion:Blei - bolometer.Bolometersignal:Spannungsänderung über R_{Bolo}

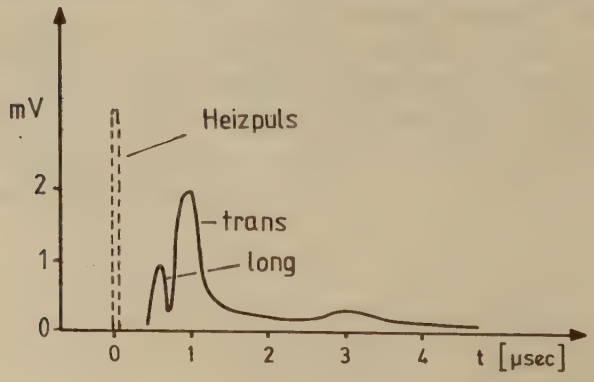
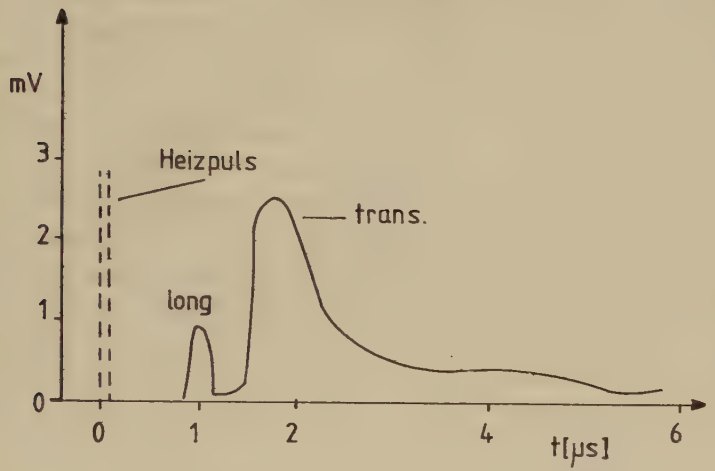


Abb.31 Thermopulsexperiment an einem 8 mm dicken Si - Kristall.Das Bolometersignal (Spannungsabfall über R_{Bolo}) wird nach Abgabe eines einzigen Heizpulses gemessen (Leistung 2 W).Phononenausbreitung in [111]. Pulslänge 80 ns.



In beiden Messungen (Abb. 30,31) konnten die ballistisch propagierenden longitudinalen und transversalen Moden beobachtet werden.Die Laufzeiten werden durch die jeweiligen Schallgeschwindigkeiten bestimmt.Infolge der Entartung bei Ausbreitung der Phononen in [111] Richtung wird nur eine transversale Mode beobachtet.Zu längeren Laufzeiten hin wird noch ein verbreitertes Signal beobachtet, das zurückzuführen ist auf Seitenwandreflexionen und Streuungen der Phononen an Gitterdefekten.

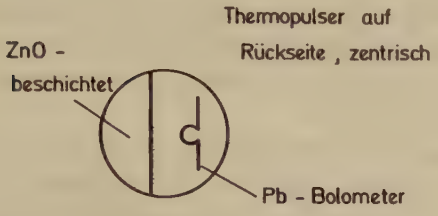
Die Bolometermessungen wurden mit niedrigen Heizpulsleistungen durchgeführt, um ein Überstèuern des Bolometers durch zu große Temperaturänderungen zu vermeiden.Der Sprung - bereich ΔT des Metalls würde dann nur Ausschnitte aus der Gesamtsignalhöhe des Phononenpulses liefern.
Es ist daher auch nicht zu erwarten, daß in den so erzeug - ten Phononenpulsen bereits THz - Phononen nennenswert ent - halten sind.Es wurde lediglich gezeigt,daß sowohl die Proben eine hohe Reinheit und Fehlerfreiheit besitzen (nur geringer Streuuntergrund) und die akustische Kopplung der Quelle an den Kristall den üblichen Anforderungen entspricht.Dies kann aus den in der Literatur beschriebenen Thermopulsdaten entnommen werden z.B.(17 - 22).Aus diesem Grund kann jedoch angenommen werden,daß bei Abgabe von Heizpulsen hoher Leistungs-dichte THz - Phononen vom Heizfilm in den Kristall abgestrahlt werden.Für die Messungen mit ZnO(Cu) - Schicht wurden z.T. wesentlich dünnere Kristalle als bei den Bolometermessungen verwendet, sodaß letzlich nur folgende Möglichkeiten bleiben:

a, die Grenzschicht Kristall - ZnO ist unpassierbar für THz - Phononen (obwohl R.Wengert an einer dieser Pro - ben seine Ergebnisse bestätigen konnte (2)).

b, ZnO ist bei der beschriebenen Anwendung generell nicht fähig,THz - Phononen zu detektieren und die Ergebnisse der Arbeiten (1-7) sind auf nicht erkannte Störungen durch IRS und Thermolumineszenz zurückzuführen.

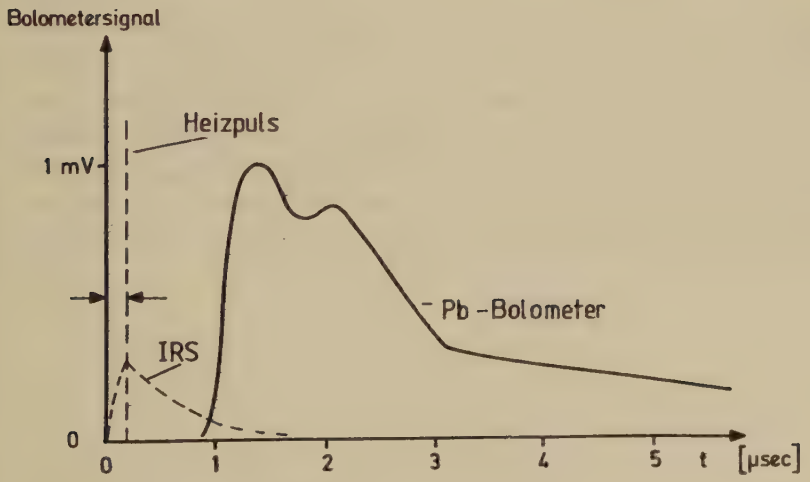
Mit Hilfe des Bleibolometers wurde ein weiteres Kontroll - experiment durchgeführt:
Von einer Si -Scheibe mit ZnO - Beschichtung aus dem Transport-reaktionsverfahren wurde die ZnO -Schicht zur Hälfte wieder entfernt und dafür ein Bleibolometer aufgedampft.

Abb. 32 Kombinierte Bleibolometer - ZnO - Anordnung auf einer 1,5 mm dicken Si - Scheibe



Es zeigte sich der erwartete Effekt:
das Bleibolometer spricht bereits bei Abgabe eines einzigen Heizpulses von ca. 2 W Leistung an (Abb. 33),am ZnO ist erst in der Koinzidenzanordnung bei Abgabe von ca. 10^6 Heizpulsen hoher Leistung (50 W) Lumineszenz zu beobachten, nämlich durch die prompte IRS.

Abb. 33 Bolometersignal nach Abgabe eines Heizpulses von 2 W Leistung , die rel .Lage der später gemessenen IRS ist gestrichelt eingezeichnet.(Anordnung gem Abb.32)



Bei der in Abb. 32 gezeigten Anordnung breiten sich die Phononen vom Thermopulser zum Bolometer , bzw. zur ZnO-Schicht schräg zur [111] Richtung aus. Es wurde daher auf eine Kennzeichnung der Moden verzichtet. Infolge der Laufstrek - ke vom Thermopulser (bzw. zur ZnO-Schicht) von ca. 4 mm und der endlichen Ausdehnung der Pulserfläche und der Detek- torfläche ergibt sich die zeitliche Breite des Signals.

Mit diesem Experiment konnte bewiesen werden, daß die Hoch - temperaturpräparation der ZnO - Schicht keine negativen Auswirkungen auf die Si - Kristalle bezüglich der Phononen - leitung hatte.
Ein weiteres Experiment zur Überprüfung des Einflusses der Grenzschicht Kristall - Detektor mit einem Aufdampfen des Bolometer auf die ZnO-Schicht scheiterte ,da infolge der poly - kristallinen Unterlage die Leiterbahnen immer unterbrochen waren.
Das Problem, ob ZnO(Cu) überhaupt fähig ist, einzelne THz - phononen nachzuweisen läßt sich ohnehin am besten mit einer Wiederholung der Experimente an ZnO - Einkristallen über - prüfen.

5.2. Messungen an ZnO - Einkristallen

5.2.1. Verhalten der Lumineszenz von ZnO - Kristallen bei Thermopulsversuchen

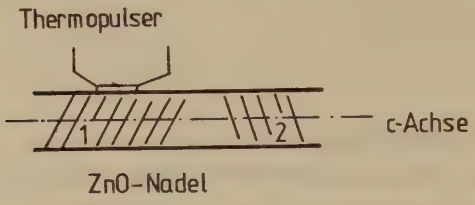
Wesentlich für diese Versuchsreihe ist

a, " perfect match " zwischen Phononenleiter und Detektor (UV -angeregter Bereich des ZnO - Kristalls)

b, je nach Anregung kann die Laufstrecke der Phononen von der Quelle zum Detektorbereich kontinuierlich variiert werden, insbesondere kann auch die unmittel - bare Umgebung der Quelle untersucht werden.Somit können auch kürzeste Lebensdauern der THz - Phononen erfaßt werden.

Die ZnO - Kristalle wurden über Glowkurvenmessungen auf ihren Gehalt an flachen Haftstellen untersucht, soweit er nicht von früheren IRS - Messungen bereits bekannt war (R.Kammermeier (33,35)).Die ZnO -Kristalle sind immer n - leitend,z.T. mit relativ hohen Leitfähigkeiten.
Die Kristalle lagen als Nadeln mit Längen zwischen 15 mm und 30 mm vor, mit Durchmessern von 1mm bis 3 mm.
Zur Phononendetektion wurden alle Kristalle mit UV - Strahlung von λ = 365 nm angeregt (Absorptionskante von ZnO:368 nm). Diese Strahlung dringt in ZnO weit ein,somit werden die Kristalle homogen in der Tiefe angeregt,insbesondere auch die unmittelbare Umgebung der Thermopulserschicht.Um Laufzeiteffekte studieren zu können wurde der Kristall in Zonen mit gewissem Abstand von der Phononenquelle (homogen über die Dicke) angeregt.

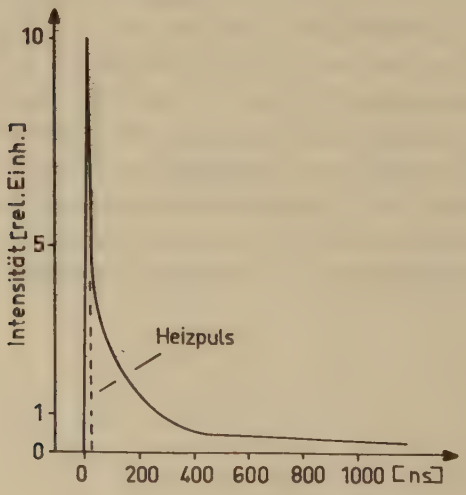
Abb. 34 verschiedenen Anregungszonen einer ZnO -Nadel,
Zone 1: Untersuchung der Umgebung des Thermopulsers
Zone 2: Laufzeitmessungen



Die Konstantan - Thermopulserschicht wurde auf eine Facette der Kristallnadel aufgedampft.

Messungen bei angeregter Zone 1 über der Thermopulserschicht:

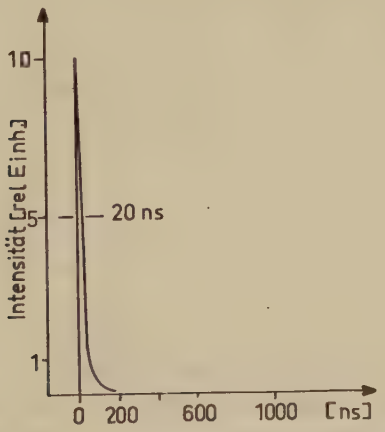
Abb. 35 Thermopulsexperiment an ZnO - Nadel in Koinzidenz - anordnung,Breite der Heizpulse : 20 ns (über Hg - Pulser),Pulsleistung 100 W,insgesamt abgegeben ca. 10^5 Heizpulse:



Dabei zeigte sich folgender typischer zeitlicher Verlauf des Koinzidenzexperiments:
Während der Abgabe der ersten hundert bis tausend Impulse nach Anregung des Kristalls (abhängig vom jeweiligen Kristall) fielen die Stopereignisse nur in den prompten Peak von 20 ns Breite (= Breite des Thermopulses),in der Folge trugen die Ereignisse im wesentlichen zum Langzeitanteil der Kurve bei (Abb. 35).

Um den Kurzzeitanteil bei den Messungen hervorzuheben, wurden nur jeweils die ersten hundert Thermopulse,bzw. die dazu korrelierte Lumineszenz registriert und danach er - neut angeregt.Nach mehreren solcher Meßzyklen ergab sich folgendes Bild:

Abb. 36 Koinzidenzmessung:Thermopulser auf ZnO - Einkristall Berücksichtigung nur des Kurzzeitanteils der Lumineszenz .Heizpulsbreite 20 ns,Pulsleistung 100 W

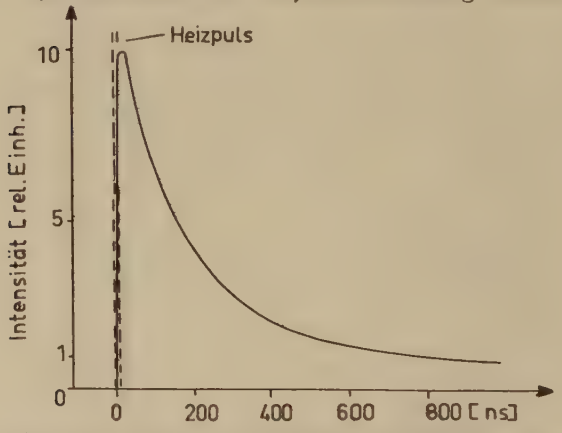


Die zeitliche Breite der Lumineszenz wurde nur durch die Breite des Heizpulses bestimmt,d.h. die Anstiegs -und Abkling- zeiten dieses Lumineszenzanteils liegt bei wenigen Nanosekunden

Die Lumineszenzausbeute dieses Prozesses war groß (daher das bevorzugte Einzählen zu Beginn der Messung):
Sie lag typisch bei ca. 0,3 Ereignissen/ Heizpuls (Die exakten Werte hängen von der Pulsspannung ab).Die Ausbeute nahm im Verlauf der ersten hundert bis tausend Impulse rasch ab,sodaß danach der Langzeitanteil der Lumineszenz hervortrat.
Das Spektrum der Kurzzeit wies die typische grüne Bande des Rekombinationsleuchtens des Cu - Zentrums auf.

Die komplementäre Messung,nämlich die Berücksichtigung von Heizpulsen in der Folge der ersten hundert,führte zur Registrierung der Langzeitlumineszenz.

Abb. . 37 Langzeitanteil der prompten Lumineszenz bei Thermopulsexperimenten an ZnO - Kristallen (Pulsbreite 20 ns,Pulsleistung 100 W)



Dieser Beitrag wurde als IR -stimulierte Lumineszenz identi - fiziert:

a, infolge des typischen Abklingens und der geringen Maxi - mumsverschiebung

b, es handelt sich ebenfalls um grüne Lumineszenz

c, die Lumineszenz erschöpfte sich auch bei Abgabe großer Anzahlen von Heizpulsen nicht (analog zu den Ergebnissen bei nichtlumineszierenden Kristallen)

d, in Abschnitt 5.1.2. Abb. 28 und 29 wurde bereits der experimentelle Nachweis für IRS an ZnO - Kristallen bei Thermopulsversuchen durchgeführt.
e, die Lumineszenz war auch bei Anregung der Zone 2 der ZnO - Nadel zu beobachten.

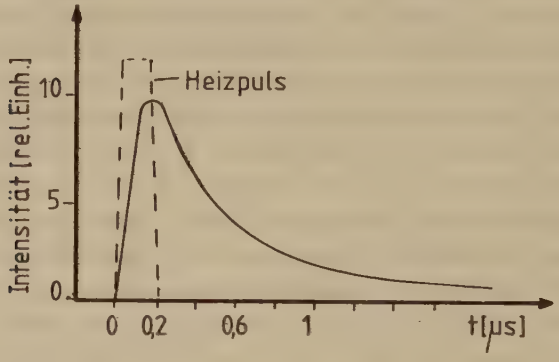
Die Kurzzeitlumineszenz wird als Elektrophotolumineszenz erklärt, also als Folge der Einwirkung großer elektrischer Felder auf den Kristall.Der Effekt zeigt zwar das grüne Rekombinationsleuchten, nicht aber das zeitliche Verhalten (Abklingdauer,Maximumsverschiebung) der Löcherrekombination. Es wird daher vermutet , daß dieser Effekt nicht unbedingt über die Löchertraps erfolgt, sondern daß durch Stoßionisation (möglicherweise auch Ladungsträgerinjektion von den Elektro - den) Löcher am bereits angeregten Cu^{+}-Zentrum erzeugt werden, die infolge ihrer kinetischen Energie nicht mehr den Zwi - schenzustand besetzen (Nachleuchten),sondern ohne zeit - liche Verzögerung rekombinieren.Ohne UV - Anregung ist dieser Effekt nicht zu beobachten.Aus der geringen Photonenrate dieses Prozesses wird geschlossen, daß nur eine dünne Schicht in der Umgebung des Thermopulsers an diesem Effekt beteiligt ist.Die Möglichkeit, daß das scharfe Zeitspektrum durch einen pile-up- Effekt verursacht wird (infolge der hohen Ausbeute zu Beginn der Thermopulsversuche), konnte durch die in 4.2. beschriebenen Maßnahmen ausgeschlossen werden.

Bei den Thermopulsmessungen bei angeregter Zone 1 der ZnO - Kristalle wurde keine durch THz - Phononen stimulierte Lumi - neszenz gefunden.Da der Kristall homogen angeregt war, erwar - tet man eine Lumineszenz,die prompt einsetzt (angeregte Umge - bung des Thermopulsers) und in ihrem weiteren zeitlichen Verlauf das Lebensdauerverhalten der THz -Phononen beschreibt.
Da zusätzlich zu IRS keine weiteren Koinzidenzen (zu späteren Zeitpunkten) gemessen wurden , bleibt nur der Schluß, daß die THz - Phononen eine geringere Lebensdauer als 20 ns (Puls - breite) haben (sofern überhaupt einzelne THz - Phononen flache Löchertraps stimulieren können)

Messungen an ZnO - Kristallen mit Anregung der zum Thermopulser versetzt liegenden Zone 2:

Bei Koinzidenzmessungen mit Phononenerzeugung durch Thermo - puls wurde nur IRS beobachtet.

Abb. 38 IRS - Lumineszenz bei einem ZnO - Kristall mit einem Abstand Heizfilm - Detektorzone von 4 mm. (Pulsdauer 200 ns, Pulsleistung 50W)

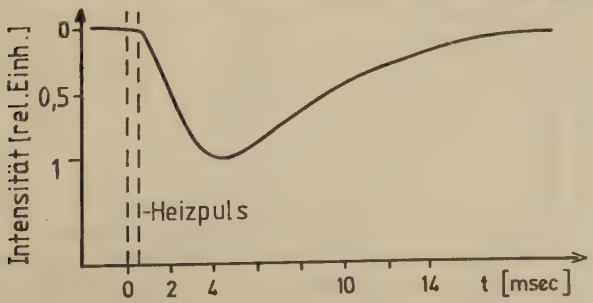


Die schnelle Komponente der prompten Lumineszenz wurde erwartungsgemäß nicht beobachtet,da der Abstand der angeregten Zone vom Thermopulser zu groß ist.Ebenso wurden in Überein - stimmung mit den vorangegangenen Messungen (angeregte Zone 1) keine propagierenden THz - Phononen detektiert.

Verzögerte Lumineszenz konnte erst bei wesentlich längeren Heizpulsdauern (typisch 0,5 ms) beobachtet werden. Hierbei handelte es sich aber wieder um normale Thermolumineszenz infolge Wärmeleitung.Bei einer Verkleinerung der Pulsdau unter Beibehaltung der Heizpulsleistung wurde keine proportio - nale Abnahme der Ausbeute festgestellt, sondern ab einer be - stimmten Grenze blieb die Lumineszenz vollkommen aus.(≈200 µs) Die Thermolumineszenz war hinreichend intensiv, um mit einer Photomultiplier - Oszillographenanordnung beobachtet werden zu können.

Ein weiteres Indiz für Thermolumineszenz ist folgendes Verhalten der ZnO - Schicht:
Gibt man nach der Anregung der ZnO - Schicht zwei Thermo - pulse (Dauer D_1,D_2) mit $D_1 = D_2 > 200\ \mu s$ und gleicher Leistung P ab, so tritt nur nach dem ersten Puls Lumineszenz auf , nicht mehr jedoch bei Abgabe des zweiten Pulses.
Wählt man dagegen bei gleicher Leistung P $D_2 > D_1$, so tritt auch beim zweiten Puls Lumineszenz auf,jedoch mit einer Verzögerung , die genau der Dauer der Lumineszenz bei Ab - gabe des ersten Pulses entspricht.Dies kann durch Thermo - lumineszenz erklärt werden.Der jeweils erste Heizpuls führt zu einer Erwärmung der Probe auf die Temperatur T_1 mit der entsprechenden Ausleuchtung der Glowkurve, ein zweiter Puls gleicher Dauer kann den Kristall ebenfalls nur bis T_1 er - wärmen , deshalb tritt keine Lumineszenz mehr auf,bei größerer Länge D_2 des Heizpulses wird T_1 nach einer gewissen Zeit überschritten, es tritt mit dieser Verzögerung erneut Lumineszenz auf.Dieser Effekt kann über die Einwirkung von THz -Phononen aus dem Phononenpuls nicht erklärt werden , da infolge gleicher Heizpulsleistung P in allen Fällen das gleiche Phononenspektrum angeregt wird.Somit dürfte bei Abgabe des zweiten Pulses nur dann keine Lumineszenz mehr auftre - ten, wenn die Traps entsprechender Tiefe alle entleert sind. Dann kann aber bei Abgabe eines längeren Heizpulses (mit gleichem Phononenspektrum) auch keine Lumineszenz mehr auf - treten.

Abb. 39 Thermolumineszenz einer ZnO - Nadel mit einem Abstand Thermopulser - Detektorzone von 4 mm,Abgabe eines Heizpulses von 0,5 ms Dauer und 50 W Leistung,Beobachtung über Photomultiplier - Oszillographen(negatives Spannungssignal).

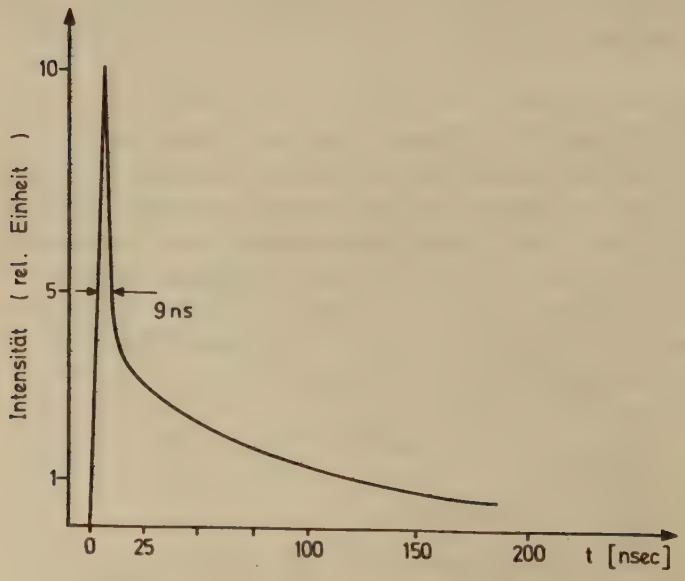


5.2.2. Beschuß von ZnO - Einkristallen mit α - Teilchen

Die ZnO - Kristalle wurden über die α - Kanone mit einer Rate von ca. $2 \cdot 10^3$ Teilchen/s beschossen. Die Einfallsrichtung der Teilchen lag senkrecht zur c - Achse, dies hatte lediglich technische Gründe. Testmessung zeigten keine Abhängigkeit der hier beschriebenen Ergebnisse von der Einfallsrichtung.

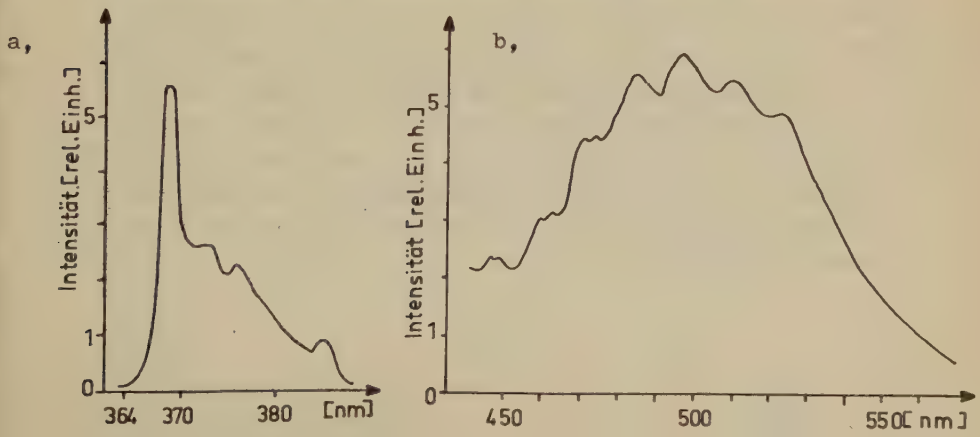
In allen Fällen wurden Szintillationen hoher Intensität als Folge des Beschusses festgestellt. Die Laufzeitmessungen zeigten erwartungsgemäß prompte Szintillationen (analog zu Abschnitt 5.1.2). Langzeitanteile des Laufzeitspektrums, die auf propagierende THz - Phononen schließen lassen, wurden nicht beobachtet.

Abb. 40 Zeitspektrum der Szintillationen beim Beschuß von ZnO - Einkristallen mit 5,2 MeV α - Teilchen (T = 5 K)



Das Zeitspektrum zeigt zwei verschieden schnelle Anteile:
a, eine zeitlich scharfe Emission von weniger als 10 ns Breite
b, die bereits bekannte Lumineszenz mit ihrem Abklingen von mehreren hundert Nanosekunden Dauer.
(Diese Messung wurde ohne Grünfilter vor dem Stopmultiplier durchgeführt).
Untersuchte man das emittierte Licht spektral, so zeigten sich zwei Beiträge:
a, ein UV - Anteil mit Maximum bei 368 nm (bei 5 K). Dies ist kantennahe Emission (Die Absorptionskante von ZnO liegt genau an dieser Stelle). (Abb. 41 a)
b, die bekannte grüne Rekombinationsbande um 500 nm. (Abb. 41 b).
Die beobachtete Emission trat unabhängig davon auf, ob der ZnO - Kristall mit UV - Strahlung angeregt war oder nicht. Unterschiede zwischen den einzelnen Kristallen zeigten sich in den relativen Anteilen von UV - Bande und grüner Bande, sowie in den Quantenausbeuten.
Bei schwach Cu - dotierten Kristallen überwog stark der UV - Anteil, mit steigendem Cu - Gehalt nahm dieser Beitrag ab und der grüne Anteil der Lumineszenz trat stark hervor. Die Quantenausbeuten waren bei den dotierten Kristallen höher als bei den undotierten.

Abb. 41 a,Kantennahe Emission und b, grüne Rekombinations - lumineszenz bei Beschuß von ZnO(Cu) mit α- Teilchen

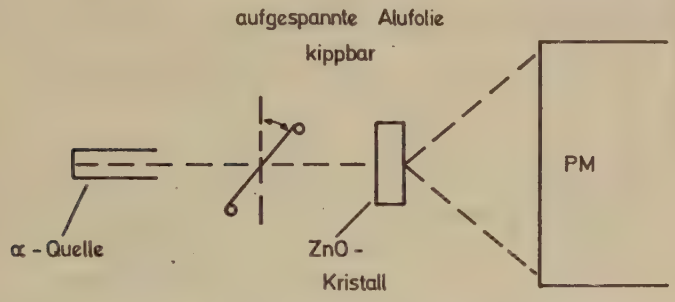


Der UV - Anteil trug nur zur schnellen Komponente der Szintillation bei, die grüne Bande hingegen verursachte das Abklingen von einigen hundert Nanosekunden (normale Lumineszenz).Geringe Anteile der grünen Emission konnten auch im schnellen Teil der Szintillationen gefunden werden.
Sowohl der UV- Anteil als auch die grüne Lumineszenz werden verursacht durch freie Löcher und Elektronen, die über ver - schiedene Zwischenschritte entweder direkt rekombinieren (UV) oder indirekt am Cu-Zentrum(grüne Lumineszenz).Ein weiterer Hinweis auf die Produktion freier Ladungsträger ist die all - mähliche Besetzung der Traps in einem anfänglich nicht ange - regten Kristall.Nach einer durchschnittlichen Bestrahlungszeit von ca. 1 Stunde konnte eine Glowkurve mittlerer Intensi - tät gefahren werden.
Die Szintillationen konnten auch bei 77 K beobachtet werden, jedoch verbreiterte sich die schnelle Komponente etwas (HB ca.15 die UV - Emission lag bei 375 nm (temperaturabhängige Ab - sorptionskante),die grüne Emission zeigte keine Feinstruk - tur mehr und die Quantenausbeute ging zurück.
Die Zusammensetzung des Szintillationslichts ermöglichte eine Variation der Koinzidenzmeßmethode beim Beschuß von ZnO mit α- Teilchen: Es wurde die Szintillationsfolie aus der α - Kanone entfernt und vor den startseitigen Photo - multiplier ein UV - Filter montiert.Das Startsignal wird dann durch die schnelle UV - Szintillation geliefert,man kann hierdurch den (geringen) Energieverlust beim Durch - gang durch die Folie vermeiden

Quantenausbeuten: Die Quantenausbeute hängt erwartungsge - mäß stark von der Teilchenenergie ab.Diese Abhängigkeit konnte über eine einfache Anordnung untersucht werden: das Bremsvermögen von Metallen bei Teilchendurchgang ist sehr gut bekannt.Oberhalb einer Teilchenenergie von ca.1MeV besteht ein nahezu linearer Zusammenhang zwischen Energie - verlust des Teilchens und der Massenbelegung der bremsenden Metallfolie.(39)

Um die Quantenausbeute der Szintillationen bei Beschuß von ZnO - Kristallen in Abhängigkeit von der Teilchenenergie zu bestimmen,wurden die 5,2 MeV α- Teilchen durch eine Alufolie (Massenbelegung 1mg/cm^2) gebremst.Die Variation des Bremsvermögens wurde durch Verkippen der Aluminiumfolie gegenüber dem Teilchenstrahl erreicht.

Abb. 42: Anordnung zur Bestimmung der Quantenausbeute der Szintillationen von der Teilchenenergie



Als Maß für die Quantenausbeute wurde das Impulshöhenspektrum genommen, das sich bei Aufnahme über Photomultiplier und VKA ergab.

Abb. 43 Impulshöhenspektrum der Szintillationen eines ZnO - Kristalls bei Beschuß mit 5,2 MeV α- Teilchen (UV und grüne Bande,Abstrahlung in 4π)

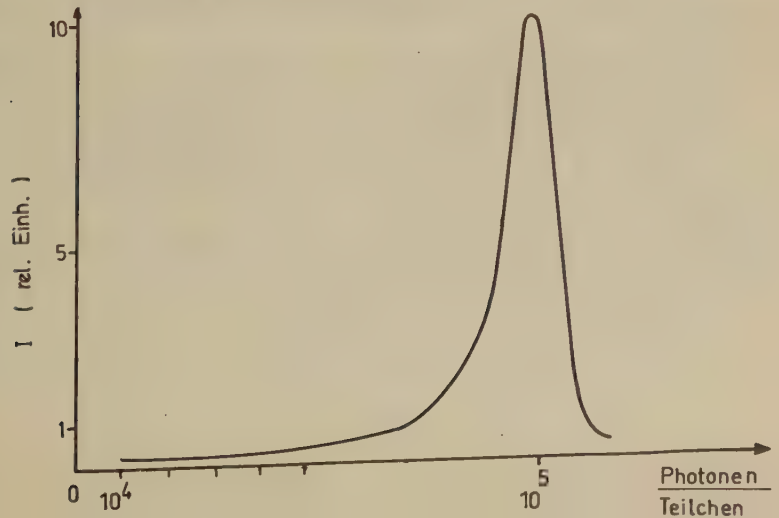
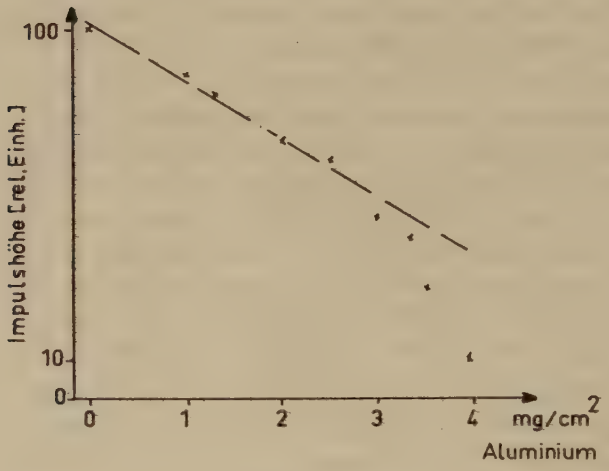


Abb. 44 Abhängigkeit der Impulshöhe der prompten Szintillation von der Teilchenenrgie (hier von der Massenbelegung der bremsenden Folie.



Das Bremsvermögen von Aluminium beträgt im linearen Bereich oberhalb 1 MeV Teilchenenergie ca. - 1 MeV/ (mg/cm^2) (39)

Die Szintillationseigenschaften von ZnO bei Beschuß mit α- Teilchen ähneln dem Verhalten der Alkalihalogenid - Detektoren für α- Teilchen.(37,39,42)
Auch hier zeigen die Kristalle folgende Eigenschaften:

a, undotierte Kristalle zeigen bei Teilchenbeschuß kantennahe Emission.

b, bei zunehmender Dotierung mit einem Aktivator (Thallium) tritt das Aktivatorspektrum in der Lumineszenz auf.

c, mit zunehmender Dotierung wächst die Quantenausbeute

d, es besteht ein linearer Zusammenhang zwischen Teilchen - energie und Quantenausbeute

e, mit sinkender Temperatur nimmt die Quantenausbeute zu und die Szintillationen werden schneller.

Die genannten Eigenschaften der thalliumdotierten Alkali - halogenidkristalle werden ebenfalls über die Erzeugung von freien Löchern und Elektronen erklärt , die als Elektron-Loch - Paare entweder direkt rekombinieren können (kanten - nahe Emission) oder indirekt an einem Aktivatorzentrum , wobei das charakteristische Aktivatorspektrum emittiert wird.

5.2.3. Thermopulsmessungen an ZnO - Einkristallen mit Hilfe des supraleitenden Bolometers.

Analog zu den Experimenten mit nichtlumineszierenden Kri - stallen konnte auch an ZnO - Kristallen keine phononensti - mulierte Lumineszenz gefunden werden.Um auch hier einen störenden Einfluß der Grenzschicht Thermopulser - ZnO - Kristall ausschließen zu können, wird ein Testexperiment mit Hilfe eines Bleibolometers durchgeführt.
Das Bleibolometer wurde gegenüber dem Thermopulser auf eine Facette der ZnO - Nadel aufgedampft.Der Leiterstrei - fen hatte eine Fläche von ca. 3 x 0,4 mm^2 (also keine Ω - Form). Die relativ große Ausdehnung des Bolometers gemessen an der Laufstrecke der Phononen reduziert die Zeitauflösung der Anordnung, andererseits ist sie notwendig, um eine meßbare Widerstandsänderung zu erhalten.
Insgesamt wurden vier ZnO - Nadeln auf diese Weise untersucht. In den folgenden Abbildungen werden repräsentative Ergeb - nisse gezeigt, jedoch sind die Signalhöhen nicht direkt miteinander vergleichbar, da die eingeprägten Ströme und die Ausgangstemperaturen vor Ankunft der Phononenpulse verschieden sind.Die gezeigten Kurven ergeben sich wieder - um nach Abgabe eines Heizpulses geringer Leistung (Aufnahme am Speicheroszillographen).Die bereits bekannten IRS - Effekte konnten erst bei Koinzidenzmessung bei einer Vielzahl von Heizpulsen hoher Leistung gemessen werden, phononenstimu - lierte Lumineszenz war nicht festzustellen.

Abb. 45 a, Phononenlaufzeitspektrum an einer ZnO - Ein - kristallnadel,Laufstrecke ca. 1,5 mm
Abgabe eines Heizpulses von 100 ns Breite,Puls - leistung 2 W, Messung mit Bleibolometer

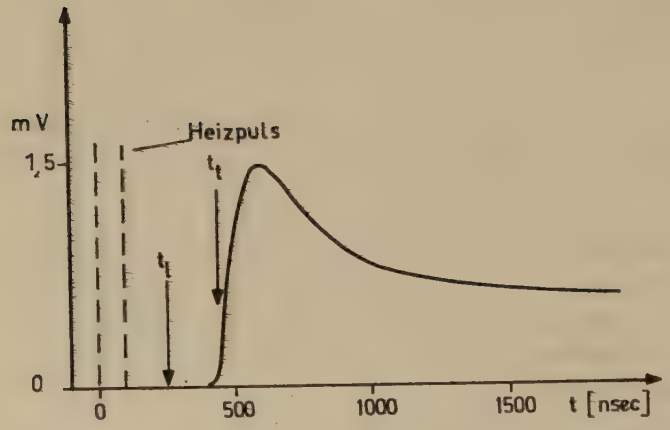


Abb 45 b Daten wie bei Abb. 45 a , jedoch Pulslänge 1 µs (gleicher Kristall)

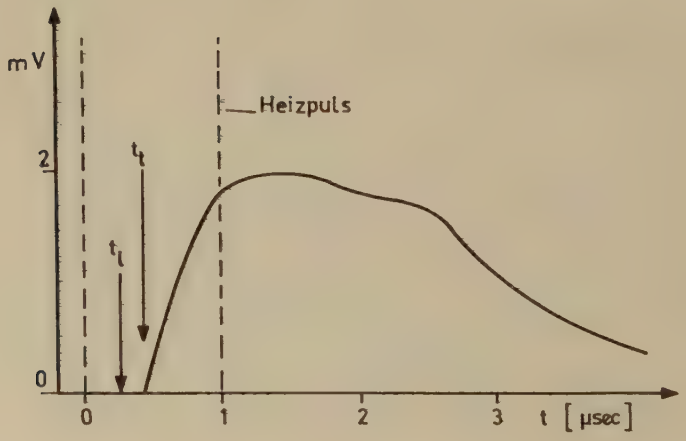
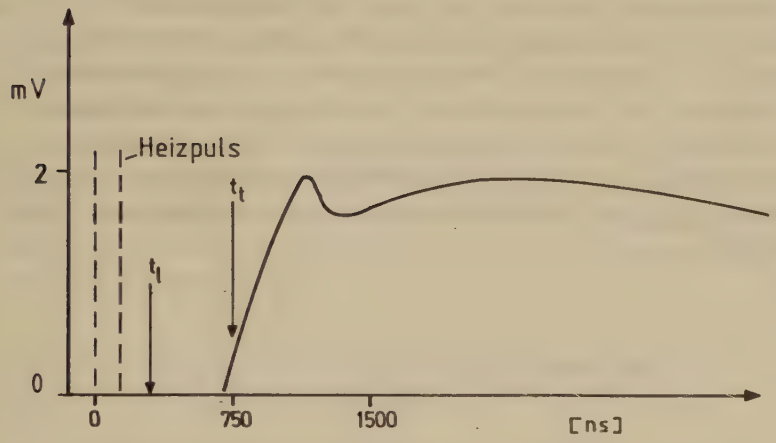


Abb. 46 ZnO - Einkristall von ca. 2 mm Dicke
Thermopulsdaten wie bei Abb. 45 a,b, jedoch
Pulslänge 150 ns



Die Thermopulsversuche mit Bolometerdetektion wurden mit niedrigen Pulsleistungen durchgeführt, damit der Detektor nicht übersteuert.Die Messungen zeigen einen ballistisch propagierenden Puls, der über die Schallgeschwindigkeit als transversale Mode identifiziert wird.Ein ballistischer longitudinaler Anteil kann nicht beobachtet werden.
Dies kann zum einen verursacht werden durch eine geringere Anregungsdichte der Phononen infolge einer höheren Schall - geschwindigkeit, zum anderen ist eine Wechselwirkung mit freien Elektronen (n -leitendes ZnO) über das piezoelektrische Deformationsfeld möglich, wodurch die longitudinalen Phononen weggedämpft werden.(Elektronengas).Ähnliche Effekte wurden bereits an InSb gemessen (11).
Der diffuse Anteil des Phononenpulses ist erwartungsgemäß bei ZnO deutlich ausgeprägter als bei den Si - Kristallen. Die ZnO - Nadeln sind aufgrund des Transportreaktions -

verfahrens stärker verunreinigt , bzw. gestört als die zonengezogenen Si - Scheiben.Die Verunreini - gungen in ZnO sind Voraussetzung für den Detektionsme - chanismus.
Die Thermopulsversuche zeigen auch im Falle des ZnO eine gute akustische Kopplung zwischen Heizschicht und Kristall.Bei Abgabe von Heizpulsen hoher Leistungsdichte ist daher mit der Emission von THz -Phononen zu rechnen. Die Versuche in Koinzidenzanordnung mit angeregter ZnO - Schicht zeigen aber nur die bereits bekannte IRS und schnelle Szintillationen als Folge des elektrischen Feldes bei Abgabe der Heizpulse.

6. Diskussion,Vergleich mit den Arbeiten von N.Riehl, A.Müller und R.Wengert (1-7).

Im Verlauf dieser Arbeit wurden verschiedenen Lumineszenz - effekte an ZnO gefunden, die auf Nebenwirkungen der ver - schiedenen Phononenerzeugungsmechanismen zurückzuführen sind.Eine Einwirkung propagierender THz -Phononen auf flache Löchertraps konnte nicht gemessen werden.
Die gefundenen Lumineszenzmechanismen sind bekannt:

a, infrarotstimulierte Lumineszenz
b, Thermolumineszenz
c, Elektrophotolumineszenz
d, leuchtende Rekombination freier Löcher und Elektronen , die beim Einschlag hochenergetischer α- Teilchen auf Kristallen erzeugt werden.

Das Fehlen jeglicher phononenstimulierter Lumineszenz widerspricht der Auffassung von N.Riehl und Mitarbeitern,daß ZnO(Cu) in der beschriebenen Weise als Detektor für THz - Phononen zu verwenden ist.
Diese Diskrepanz kann nicht geklärt werden z.B. durch die Annahme,daß Unterschiede in den ZnO - Schichten Ursache des Versagens sind,da

a, gleiches Ausgangsmaterial der Firma Stamm,Gräfelfing verwendet wurde.
b, R.Wengert Si - Proben mit ZnO -Schichten verwendete, die im Zuge dieser Arbeit über das Transportreaktions - verfahren hergestellt wurden und an diesen seine Ergebnisse bestätigen konnte (2).

Weiterhin sind die experimentellen Voraussetzungen dieser Arbeit wesentlich besser gewesen als bei den früheren Versuchen:

a, die Koinzidenzmethode ist wesentlich empfindlicher als die einfache Photomultiplier - Oszillographenanordnung, die früher verwendet wurde.
b, bei den Thermopulsexperimenten konnten wesentlich höhere Pulsleistungen umgesetzt werden und damit konnte der Anteil der THz-Phononen im Phononenpuls erheblich gesteigert werden gegenüber den früheren Arbeiten.

Dennoch konnte im Gegensatz zur These von N.Riehl keine Phononenstimulation gefunden werden.Die höhere Qualität der Meßbedingungen in der vorliegenden Arbeit ergibt sich auch daraus, daß die IRS und Elektrophotolumineszenz bei den Thermopulsen gefunden wurden.Diese Einflüsse wurden bei den früheren Messungen nicht erkannt.Gleiches gilt für die Szintillationen beim Beschuß von Kristallen mit α- Teilchen.

Über Thermolumineszenz wurde in den Arbeiten (1-7) zwar berichtet, jedoch wurde dieser Einfluß als nicht wesentlich abgeschätzt.Dennoch muß vom experimentellen Standpunkt aus bezweifelt werden, daß die in den früheren Arbeiten ge - fundenen Effekte auf die Einwirkung von THz - Phononen zu - rückzuführen sind.
Dies Auffassung wird auch dadurch gestützt, daß einige der in den Arbeiten (1-7) beschriebenen Ergebnisse in sich nicht widerspruchsfrei sind, bzw. nicht konsistent sind mit üblichen Modellen der Phononen - und Lumineszenz - physik.

a, Laufzeitmessungen (1,3,5) :

Die Lumineszenzsignale bei Phononenpulsversuchen an nicht - lumineszierenden Kristallen mit ZnO -Detektorschicht weisen generell lange Laufzeiten auf, die auf diffuse Aus - breitung der Phononen infolge Rayleighstreuung zurückgeführt werden.Dennoch zeigt sich ein scharfer Anstieg der Lumineszenz von weniger als 100 ns, dem sofort das Langzeitabklingen folgt.Eine Auswirkung der zeitlichen Breite des Anregungs - pulses auf die Breite des Lumineszenzsiganls wurde nicht festgestellt.Man könnte nun annehmen, daß die gezeigte Form des Lumineszenzsignals (Abb. 7 - 9) auf eine geringe ge - speicherte Lichtsumme zurückzuführen ist, die sehr schnell ausgeleuchtet ist.Dies kann aber durch folgende Überlegung ausgeschlossen werden: Die Glowkurvendifferenzmessungen zeigen ein Ausleuchten verschieden tiefer Traps (max.Tiefe 35 meV) bei Thermopulsversuchen.Diese Traps können nur bei Ankunft hinreichend energiereicher Phononen entleert werden. Bei einer diffusen Ausbreitung infolge Rayleighstreuung treffen die hochenergetischen (hochfrequenten) Phononen wegen der ω^4 - Abhängigkeit später ein als die niederener - getischen Phononen.Dieses sukzessive Eintreffen von Phononen

höherer Energie müßte sich daher im Zeitverhalten der Lumineszenz zeigen.
Auch im Fall einer (nicht sehr wahrscheinlichen) ballistischen Ausbreitung der Phononen werden infolge der Dispersion zuerst niederenergetischere Phononen am Detektor eintreffen und erst danach höherenergetische (Grenzfall der Gruppen - geschwindigkeit 0 für akustische Phononen an der Grenze der Brillouinzone).Somit ergibt sich auch für diesen Fall ein Ausleuchten zunehmend tieferer Traps mit dem entsprechenden Zeitverhalten der Lumineszenz.
Die Laufzeitmessungen an ZnO - Einkristallen zeigten ein stufenförmiges Ansteigen der Lumineszenzintensität , wobei die einzelnen Stufen ebenfalls steile Flanken aufweisen. Die Abstände der Stufen wurde als Laufzeit der Phononen - pulse gedeutet (1,3,5).Da sie kürzer waren als im obigen Fall, wurde eine ballistische Ausbreitung der Phononen angenommen.Dies überrascht schon deshalb , weil die ZnO - Kristalle notwendigerweise stärker gestört sind als die nichtlumineszierenden Substratkristalle.Darüber hinaus gelten bezüglich des Lumineszenzanstiegs die gleichen Über - legungen wie oben.Eine spiegelnde Reflexion von THz -Pho - nonen an Kristalloberflächen, wie sie zur Erklärung der Stufenstruktur (Abb. 9) des Signals angenommen wird, ist sehr zu bezweifeln.

Eine schlüssige Erklärung der von A.Müller gefundenen Effekte ist von dieser Stelle aus schwer zu geben.Es liegt zwar nahe,Thermolumineszenz als Ursache zu vermuten,da die Wärmeleitung aber auch ein Diffusionsprozeß ist,kann sie den gezeigten Lumineszenzverlauf nicht verursachen.
A.Müller berichtet auch über phononenstimulierte Leitfähig - keit an Ge(Sb) (3) als Detektionsmechanismus.Hierbei konnte er bei Gasbeschuß des Halbleiterkristalls ein zeitlich sehr breites Signal mit Langzeitanstieg (ca. 500 µs) beobachten.Ein simultanes Experiment an dieser Probe (Dicke 1,3 mm) mit Detektion durch eine ZnO-Schicht wurde nicht durchgeführt, obwohl das Startsignal für die Laufzeitmessung durch phononenstimulierte Leitfähigkeit über eine ZnO - Pulverschicht auf der Kristallvorderseite geliefert wurde.

b, Glowkurvendifferenzmessungen:

Bei den in (1-7) beschriebenen Phononenpulsexperimenten wurde ein teilweises Ausleuchten der Lichtsummen in be - stimmten Bereichen der Glowkurve festgestellt.Bei Thermo - pulsversuchen mit Pulsleistungen unter 10 W/mm^2 wurden Traps bis zu einer Ausheiztemperatur von 20 K (teilweise bis 40 K) erfaßt (2).
Eine einfache Überlegung zeigt aber, daß bei Heizfilmtem - peraturen von ca. 10 K, wie sie sich bei der genannten Heiz - leistung einstellen, eine Entleerung tieferer Traps schlecht - hin unmöglich ist.Dies folgt aus dem Temperaturverhalten der gewöhnlichen Thermolumineszenz:
Auf der Basis des in 2.3. beschriebenen , allgemein akzeptierten Lumineszenzmodells ergibt sich die Übergangswahrscheinlich - keit einer getrappten Ladung in das entsprechende Band : (44) (Elektronen,bzw. Löcher ins Leitungs bzw.Valenzband)

$$\text{Übergangswahrscheinlichkeit } \gamma = s\, e^{-E/kT}$$

mit E Traptiefe, T Probentemperatur (ZnO -Kristall)
s sog. Sprungfaktor$[s^{-1}]$ (Anzahl der"Springversuche" des Elektrons oder Lochs)

Der Sprungfaktor s ist temperaturabhängig (44)

$$s = s_o\,(T/T_o)^b \quad \text{mit} \quad -2 \leq b \leq 2 \quad , s_o, T_o \text{ const}$$

Für eine Traptiefe von 35 meV ergibt sich bei einer Proben - temperatur von 20 K

$$\gamma = s \cdot 10^{-9}\ s^{-1}$$

Die Sprungfrequenz wird abgeschätzt zu ca. $10^8\ s^{-1}$ (32) , sodaß der Übergang ins Band innerhalb weniger Sekunden erfolgt.

Dies entspricht dem Experiment: die Ausheiztemperatur von 35 meV Traps liegt bei ca. 20 K.
Beträgt dagegen die Probentemperatur nur 10 K, so ergibt sich für 35 meV- Traps:

$$\gamma = s \cdot 2 \cdot 10^{-18} \quad s^{-1}$$

d.h. die Traps werden in endlichen Zeiten nicht ausgeleuchtet (s variiert maximal um Faktor 4 und spielt deshalb keine Rolle), die Lichtsumme in diesem Glowkurvenbereich bleibt gespeichert.

Beim Thermopulsexperiment mit einer Probentemperatur von 5 K liegt nur im Heizfilm ein thermisches Phononenspektrum entsprechend 10 K vor, das wiederum nur teilweise in den Kristall abgestrahlt wird (acoustical mismatch).Es ist daher unmöglich,daß diese Thermopulse eine weitergehende Ausleuchtung hervorrufen als eine homogene Erwärmung der gesamten Probe auf 10 K. Die Gesamtpulsdauern bei den verschiedenen Experimenten betrug weniger als 10 s (Pulsdauer x Pulszahl).

Die Verhältnisse liegen beim Beschuß von Kristallen mit α- Teilchen wie folgt: ausgeleuchtet wurden Glowkurvenbereiche bis über 70 K.Da die hierzu benötigte Energie wesentlich größer ist als die einzelner akustischer Phononen , wurde angenommen, daß die Entleerung über nicht näher erläuterte Mehrphononenprozesse erfolgt.Diese sollen infolge hoher Phononendichten in sog. Solitonen mit gewisser Wahrscheinlichkeit auftreten.(1-7) Nach der Theorie von V.Narayanamurti und C.M.Varma treten Solitonen bei Phononenpulsexperimenten nur unter bestimmten Voraussetzungen auf, die bei Beschuß eines Kristalls mit α- Teilchen nicht erfüllt sind:

1, der Effekt tritt nur in speziellen Kristallen auf, bei denen Anharmonizitäten 4. Ordnung größer sind als die 3. Ordnung (also keine allgemeine Kristalleigenschaft)

2, Solitonen ergeben sich als Lösungen eines eindimensionalen mathematischen Ansatzes, für das Experiment bedeutet das die Ausbreitung der Phononen mit einer ebenen Puls - front.

3, nur Phononen aus einem bestimmten Frequenzbereich tragen zur Bildung von Solitonen bei.Die untere Grenze dieses Bereichs wird bestimmt durch das notwendige Auftreten der Anharmonizitäten, die obere Frequenzgrenze wird durch die Zunahme dissipativer Prozesse (z.B. Rayleighstreuung) bedingt, die zu einer Verringerung der Phononenintensität im Puls führen (Konkurrenzprozeß zur Solitonenbildung)

Experimentell wurden diese Bedingungen von C.M.Varma wie folgt realisiert: Auf einen NaF - Kristall (isotopenrein) wird ein großflächiger Heizfilm aufgedampft (9 x 9 mm^2). Die Frequenz - bedingung 3 entspricht bei einem Thermopulsversuch einem Temperaturintervall, in das die Heizfilmtemperatur fallen muß. Solitonen wurden beobachtet bei Heizpulsleistungsdichten von 3 W/mm^2, d.h. das Emissionsmaximum lag im Bereich von 10^{11}Hz- Phononen.

Vergleicht man hiermit die Verhältnisse beim Beschuß von Kristallen mit α- Teilchen,so zeigt sich,daß die obigen Bedingungen nicht erfüllt sind.

Von einer praktisch punktförmigen Quelle (Einschlagsort) breitet sich die Pulsfront in Form einer Halbkugelwelle aus mit einer $1/r^2$- Abnahme der Intensität (r Radius der Phononenwolke).

Die früheren Messungen in (1-7) erfordern die bevorzugte Emission von THz-Phononen, womit die Frequenzbedingung verletzt ist (ZnO ist nicht isotopenrein, daher müßte die obere Grenze noch niedriger liegen als bei NaF).

c, sonstige Effekte im Zusammenhang mit Phononenpuls - experimenten:

A.Müller und R.Wengert berichten von Phononeninterferenzen, die sie bei Abgabe von Phononenpulsen aus einer nahezu punkt - förmigen Quelle beobachteten.Infolge der Wellennatur der Phononen sollten am Ort des Detektors Bereiche mit konstruktiver und destruktiver Interferenz auftreten, in denen dann die Lichtsummen der ZnO - Schicht mehr oder weniger stark ausgeleuchtet sind.Das so entstehende Interferenzmuster sollte Ähnlichkeit mit einem Laue - Muster haben.Es würde sich hierbei um eine erste Beobachtung kohärenter Vorgänge mit THz - Phononen handeln, die aus einer inkohärent arbeitenden Quelle emittiert werden.
Experimentell wurde die " punktförmige " Quelle realisiert durch Beschuß von Kristallen mit α - Teilchen, wobei die Beschußfläche infolge einer Blende nur einen Durchmesser von ca. 0,1 mm hat.Die Quelle arbeitet also inkohärent , d.h. Interferenzen sind nur dann zu beobachten , wenn die räumliche Kohärenzbedingung erfüllt ist:

$$a \sin \beta = \lambda/2$$

a Durchmesser der Quelle, β der Öffnungswinkel der Strahlung, innerhalb dessen Interferenz beobachtet werden kann, λ Wellenlänge der Strahlung (Phononen).
Bei einer Wellenlänge der Größenordnung 100 Å ergibt sich somit ein Öffnungswinkel von $5 \cdot 10^{-5}$ Grad.Die von A.Müller und R.Wengert beobachteten Strukturen erstreckten sich aber über die gesamte Detektoroberfläche (2π Geometrie),d.h. sie werden nicht von interferierenden THz-Phononen verursacht.

Letztlich kann nur der Schluß gezogen werden, daß die von N.Riehl, A.Müller und R.Wengert beschriebenen Effekte durch Thermolumineszenz und IRS verursacht wurden.
Es wurden zwar Testmessungen (1-7) durchgeführt, um diese Störeinflüsse zu untersuchen, jedoch wurden simultan zu den eigentlichen Phononenpulsmessungen keine Kontrollen durchgeführt.Ebenso wurden keine Vergleichsmessungen mit bereits bekannten Phononendetektoren durchgeführt.
Bei der Gasbeschußmethode wurde die in den Probenraum ragende Düse mit gewendelter Zuführung gekühlt , um die IR - Hinter - grundstrahlung zu reduzieren, jedoch war nur eine Abkühlung auf etwa 30 K möglich,um ein Ausfrieren des Beschußgases zu verhindern.Der konstante IRS - Beitrag wurde gemessen und alle darüber hinausgehende Effekte auf Einwirkung von THz - Phononen zurückgeführt.Diese Effekte könnten jedoch durch zusätzliche , pulskorrelierte IR - Strahlung hervorgerufen werden, wenn nämlich bei Abgabe der Gaspulse das durchströ - mende Gas die Düse weiter aufheizt.
Bei den Beschußversuchen mit α- Teilchen sind verschiedene Durchführungen zur mechanischen Betätigung der Blende nötig, mit der der Teilchenstrom reguliert wird.Bei mangelhafter Abschirmung kann vom zimmerwarmen Vakuumschild IR - Strahlung in den Probenraum dringen und bei den langen Meßzeiten eine Ausleuchtung der Lichtsumme bewirken.
In (1,2) wird über eine Erwärmung der Proben bei Durchfüh - rung der Phononenpulsexperimente berichtet, jedoch sei die Temperaturerhöhung kleiner gewesen als die Ausheiztempera - turen der entleerten Traps, woraus auf die zusätzliche Ein - wirkung von THz - Phononen geschlossen wurde.Die Temperatur - messung erfolgte aber nicht direkt am Kristall, sondern am Probenhalter mit einer wesentlich größeren Wärmekapazität. Bei einer schlechten Wärmekopplung Kristall - Probenhalter ist daher eine stärkere Aufheizung der Probe möglich, ohne daß dies am Thermoelement zu erkennen ist (mit dieser Aufheizung wäre auch verstärkte IR - Emission verbunden).

Mit IRS und Thermolumineszenz läßt sich auch die überraschende Feststellung von A.Müller erklären, daß die Präparationsmethode der ZnO - Schicht (Klebeverfahren, Sedimentation, Oxidation eines Zn- Spiegels) keinen Einfluß auf die Ergebnisse hatte.Dies ist für IRS selbstverständlich, da die IR - Strahlung durch die dünne Grenzschicht Kristall - Detektor nicht beeinflußt wird.Bei einer Erwärmung der Probe wird die ZnO - Schicht infolge ihrer geringen Wärmekapazität (im Vergleich zum Kristall) homogen mitgeheizt.Unterschiedliche Wärmeleitfähigkeiten der Grenzschichten wirken sich infolge der großen Kopplungfläche und der geringen Dicke der Schicht nicht aus.

7. Mikroskopisches Modell der Thermolumineszenz, Einfluß langwelliger akustischer Phononen.

In den bisherigen Arbeiten (1-7) wurde der eigentliche Entleerungsmechanismus der Traps nicht näher betrachtet. Die Möglichkeit THz - phononenstimulierter Lumineszenz wurde lediglich aufgrund der Energiebilanz diskutiert. Alle Modelle über Phononenkopplung an Haftstellen müssen vereinbar sein mit der gewöhnlichen Thermolumineszenz, also der Einwirkung eines thermischen Phononenspektrums auf Traps.Zur Ausleuchtung flacher Traps (Ausheiztemperatur kleiner 20 K) bei Thermolumineszenz stehen nur langwellige akustische Phononen zur Verfügung.

Thermolumineszenz soll hier unter dem übergeordneten Begriff: " Thermische Ionisierung von Störstellen in Halbleitern " betrachtet werden.Dieses Problem wurde vor allem Anfang der Fünfziger Jahre mit der Entwicklung der Halbleiterphysik stärker diskutiert.(43 - 46)
Grundlage dieser Betrachtungen ist das Quasiwasserstoff - modell , das auch zur Erklärung der IRS an ZnO und ZnS herangezogen wird (32,33)
Das von der geladenen Störstelle eingefangene Loch oder Elektron umkreist den Kristalldefekt in einem Abstand, der groß ist im Vergleich zur Gitterkonstanten.Die Bindungsenergie dieser Konfiguration berechnet sich vollkommen analog zum Wasserstoffmodell, es wird lediglich die Abschirmung des Coulombpotentials durch den Kristall über die Dielektrizi - tätskonstanten berücksichtigt (Kontinuumsnäherung),sowie der Kristalleinfluß auf die Ladung über die " effektive Mas - sen"- Näherung.Die Gültigkeit dieses Modells wurde durch das Auffinden angeregter Zustände dieser Quasiwasserstoff - atome bewiesen (47):
Bei Temperaturen von 5K wurden an p - und n- leitendem Sili - zium bei IR - Absorptionsmessungen scharfe Linien gefunden, die der Anregungsenergie der getrappten Ladung in höhere Niveaus entspricht (1s - 2p, 1s - 3p, 1s - Ionisierung)

Die Breite der gefundenen Absorptionslinien ist temperatur - abhängig, es wurde ein bevorzugtes Ankoppeln akustischer Phononen gefunden (bei Temperaturen unter 100 K),deren Wellenlänge mit dem Bohrschen Radius des Quasiwasserstoff - atoms übereinstimmt.Die Bindungsenergie der getrappten Ladung hängt u.a. von der relativen Lage der Ionenrümpfe im Trapbereich ab (Born - Oppenheimer - Näherung) Langwelligere Phononen ändern die relative Lage der Ionen - rümpfe nicht wesentlich, der Einfluß kurzwelliger Phononen mittelt sich über den Haftstellenbereich aus.

Ausdehnung flacher Haftstellen in ZnO:

Bohrscher Radius des Quasiwasserstoffatoms:

$$a_{ZnO} = (m/m^*)\,\varepsilon^* a_H$$

m effektive Masse des getrappten Lochs
ε^* effektive Dielektrizitätskonstante
a_H Bohrscher Radius des Wasserstoffatoms

Die effektive Masse des getrappten Lochs berechnet sich aus der Ionsisierungsenergie (32)

$$E_{ther} = (e^4 m^*)/(2\hbar^2 \varepsilon^{*2})$$

mit $\varepsilon^* = (1/\varepsilon(0) + 5c/16)^{-1}$, $c = 1/\varepsilon(\infty) - 1/\varepsilon(0)$

$\varepsilon(\infty)$ Hochfrequenzdielektrizitätskonstante: in ZnO 4
$\varepsilon(0)$ statische Dielektrizitätskonstante : in ZnO 8,15

Hieraus ergibt sich für eine 14 meV - Haftstelle :

$$m^* = 0{,}04\ m_{Elektron}$$

$$a_{ZnO} = 80\ A$$
= = = = = =

In ZnO besitzen die kopplungsfähigen akustischen Phononen folgende Frequenzen:

longitudinale Mode: ca. $8 \cdot 10^{11}$ Hz (ca 3 meV)
transversale Mode: ca. $4{,}5 \cdot 10^{11}$ Hz (ca.1,5 meV)

(Die Energiewerte entsprechen den gemessenen Verbreiterungen der IR- Absorptionslinien (47) von Si größenordnungsmäßig)
Die Thermolumineszenz erfordert daher Multiphononenprozesse, um eine Ionisierung zu erreichen.Das Auftreten dieser Prozesse wurde von R.Kubo theoretisch gezeigt (45).

Somit wird auch in diesem Modell bestätigt, daß eine Trap - entleerung durch THz-Phononen in ZnO zumindest sehr unwahrscheinlich ist , sodaß ZnO als THz-Phononendetektor nicht in Frage kommt.
Eine Ionisierung von Traps durch Einzelphononenprozesse ist nur dann möglich,wenn die Kopplungsbedingung und Energie - bedingung simultan erfüllt sind (geeignetes m^*, ε^*).
Dieser Fall wurde z.B. von R.S.Crandall beobachtet,der phononenstimulierte Leitfähigkeit durch 4 meV-Traps in GaAs messen konnte.(63)
Theoretisch wäre es auch möglich,tiefere Traps über Ultraschall der passenden Wellenlänge zu entleeren (kohären - te Multiphononenprozesse).Diese Möglichkeit wird von V.V.Popov und A.V.Chaplik diskutiert (64)
Es ist zwar naheliegend, lumineszierende Kristalle zu suchen, bei denen durch geeignete ε^*, m^* auch eine THz -Phononendetektion möglich ist,jedoch erfordert dies Haftstellen,deren Durchmesser nicht mehr wesentlich größer sind als die Gitterabstände.
In diesen Fällen kann aber das Quasiwasserstoffmodell nicht uneingeschränkt verwendet werden (Kontinuumstheorie).

Kopplung langwelliger Phononen bei Fluoreszenz in ZnO:

M.Lax und E.Burstein zeigten (47) die Ankopplung langwelliger Phononen bei der Photoionisation flacher Haftstellen in Silizium.Überträgt man diesen Gedanken auf ZnO(Cu), so besteht die Möglichkeit,die Befreiungsrate von Löchern aus Traps durch Photoionisation durch gleichzeitig eingestrahlte akustische Phononen passender Wellenlänge zu modulieren. Ein solcher Prozeß ist offensichtlich von R.Baumgartner und K.F.Renk (29,30) beobachtet worden:
Ein ZnO -Kristall wurde bei Temperaturen zwischen 1,6 K und 4,2 K permanent mit UV - Strahlung gepumpt und gleichzeitig wurden Thermopulse (mit Heizleistungsdichten bis 50 W/mm^2) abgegeben.Untersuchte man zeitaufgelöst die emittierte Fluoreszenz, so stellte man eine Modulation fest (überlagert von einem starken Rauschanteil), die offensichtlich von diffus propagierenden 4 meV Phononen verursacht wird.Die Energie - bestimmung der Phononen erfolgte aus der Abhängigkeit der Fluoreszenzintensität von der Heizleistung der Thermopulse (über Weissches Modell).Es handelte sich nur um transversale Phononen, longitudinale Phononen wurden in Analogie zu eige - nen Bolometermessungen nicht registriert.
K.F.Renk und R.Baumgartner vermuten, daß sie eine neue Sorte flacher Traps mit einer Tiefe von ca. 4 meV (Ausheiztempe- ratur 2,3 K) gefunden haben.Durch Einphononenabsorption würde das Trap ionisiert,analog zur Halbleitermessung von R.S.Crandall (63).Eine direkte Überprüfung dieses Sachver - halts durch Glowkurvenmessung ist bisher noch nicht erfolgt.

Bisher sind noch folgende Punkte ungeklärt:
a, die von R.Baumgartner gemessene phononenstimulierte Lumi - neszenz tritt nur während der UV - Anregung auf

b, die phononenstimulierte Fluoreszenz wurde auch bei 4,2 K beobachtet, also oberhalb der Ausheiztemperatur des vermuteten Traps (die Intensität der Fluoreszenz ist allerdings reduziert)

Wenn es sich tatsächlich um eine neue Sorte Traps handelt, so müßte bei Probentemperaturen unter 2,3 K eine Licht - summenspeicherung auftreten, die wenigstens für kurze Zeit nach dem Abschalten des Anregungslichts ein Signal liefert. Das Auftreten der Fluoreszenz bei Temperaturen oberhalb 2,3 K ist insofern überraschend, als nach der Theorie von R.Kubo (45) die Traps bei höheren Temperaturen zu existieren aufhören:Die Ionenkonfiguration des Grundzustands und die des ionisierten Zustands unterscheiden sich nicht mehr.Bildlich gesprochen ist die Deformation des Gitters infolge thermischer Ionenbewegung größer als die Verzerrung durch die Störstelle. Nimmt man jedoch Photoionisierung der 8 K - Haftstelle mit Phononenkopplung an, so treten diese Schwierigkeiten nicht auf: Ionisierung ist nur zu beobachten während der Einstrah - lung von Photonen und die Traps existieren naturgemäß auch ober - halb von 4,2 K.Der Rückgang des Signal - Rauschverhältnisses bei der phononenstimulierten Fluoreszenz mit zunehmender Temperatur ergibt sich aus dem höheren Untergrund thermischer Phononen.Die Fluoreszenz konnte nur an einer von zwei Proben beobachtet werden. Dies könnte daran liegen, daß infolge unterschiedlicher Dotierungsverhältnisse an einer Probe der Konkurrenzprozeß " Rekombination direkt produzierter Löcher und Elektronen"stattfindet und somit der Reaktionskanal über getrappte und wieder befreite Ladungen zurückgedrängt wird.

In Übereinstimmung mit der vorliegenden Arbeit konnten R.Baumgartner und K.F.Renk keine Wechselwirkung flacher Haftstellen mit THz-Phononen registrieren.Die Durchführung eines Phononenpulsexperiments mit permanenter Anregung der ZnO - Schicht im Zuge der vorliegenden Arbeit wurde zwar diskutiert,jedoch erforderte die in Abschnitt 4.2. beschriebene Arbeitsweise der Elektronik und der hohe Rauschuntergrund an Fluoreszenz zu große Meßzeiten,um eventuell einen Effekt zu sehen.Vom jetzigen Standpunkt aus gesehen, wäre es darüberhinaus fraglich,ob ein Effekt zu registrieren wäre,da der Kryostat knapp an der oberen Temperaturgrenze (4,2 K) für diesen Effekt arbeitet.Abgesehen davon ist die Auswahl der ZnO -Proben, die phononenstimulierte Lumines - zenz zeigen, nicht systematisch erfolgt,welche Parameter hierbei zu beachten sind,werden erst künftige Messungen zeigen.

Weitere Ansatzpunkte für Phononenkopplung bei Lumineszenz - vorgängen in ZnO bietet auch der Ladungseinfang an Traps oder am Rekombinationszentrum (in dieser Hinsicht unterschei - den sich Trap und Rekombinationszentrum nicht).Der Einfang freier,durch UV-Einstrahlung erzeugter Ladungen wird als Trapping bezeichnet,der Wiedereinfang einer kurz zuvor aus einer Haftstelle befreiten Ladung wird als Retrapping bezeichnet.M.Lax stellte fest (48) , daß der Wirkungsquer - schnitt für Ladungseinfang in ein höheres Niveau des Quasi - wasserstoffatoms um Größenordnungen höher liegt als der Einfang in den Grundzustand.Die in den höheren Niveaus eingefangenen Ladungen gehen sukzessive in niedrige Niveaus über,wobei die entsprechende Energie in Form von Phononen abgestrahlt wird (sog.Kaskadenprozeß (62)).Durch Phononen - absorption kann auch wieder eine Anhebung in ein höheres Niveau erfolgen.Der größte Energiebetrag muß beim Übergang vom Niveau n =2 (n Hauptquantenzahl) in den Grundzustand abgegeben werden.Dies kann entweder durch ein Photon oder Phonon geschehen,jedenfalls weist das Niveau n = 2 die

größte Lebendauer aller Niveaus auf und steuert daher die Übergangsrate (möglicherweise handelt es sich bei der 400 ns - Lebensdauer des Zwischenniveaus bei der Rekombination eines Lochs am Cu^{+} - Zentrum um diesen Prozeß).
Bei der permanenten Anregung von ZnO wird das thermische Phononenspektrum überlagert vom Retrappingspektrum , sodaß sich ein Gleichgewicht der Fluoreszenzrate über die Emission und Reabsorption dieser Phononen einstellt.Dieses Gleichgewicht kann durch Einstrahlen von Phononen in einem Phononenpuls - experiment verschoben werden mit der entsprechenden Rück - wirkung auf die Fluoreszenz.Es ist zu beachten,daß ein solcher Prozeß sowohl an den Traps als auch an den Rekombinations - zentren angreifen könnte.Wesentlich wird hierbei sein, daß das Fluoreszenzlicht so dosiert wird,daß nicht zuviele direkt rekombinierende freie Ladungen erzeugt werden, die einen Konkurrenzprozeß zur retrappinggesteuerten Fluoreszenz darstellen.Es sei ausdrücklich darauf hingewiesen, daß hierdurch langwellige Phononen detektiert werden könnten.

8. Zusammenfassung

N.Riehl und Mitarbeiter schlugen den Einsatz von ZnO(Cu) als Detektor für einzelne THz - Phononen bei Phononenpuls - experimenten vor und sahen ihre Vorstellung durch ver - schieden Versuchsergebnisse bestätigt (1-7): Bei Tempera - turen unter 8 K werden flache Traps durch UV - Einstrahlung in ZnO(Cu) mit Löchern besetzt,die solange gespeichert blei - ben, bis durch einen Prozeß (Erwärmung,Einstrahlen von IR, Einstrahlen von THz - Phononen) der zur Befreiung nötige Energiebetrag aufgebracht wird.Die leuchtende Rekombination des befreiten Lochs mit einem Elektron an einem Aktivator - zentrum (Cu) kann durch einen Photomultiplier beobachtet werden.Man hätte somit die Möglichkeit, quantenhafte Phononen - prozesse im THz - Bereich zu studieren.
Es mußte jedoch festgestellt werden,das ZnO(Cu) innerhalb der Meßgenauigkeit der verwendeten Anordnung nicht auf THz - phononen anspricht und die in den früheren Arbeiten (1 - 7) gewonnen Ergebnisse auf nichterkannte Infrarotstimulation (IRS) oder Aufheizung der Probe (Thermolumineszenz) zurückzuführen sind.

a, In der vorliegenden Arbeit konnte trotz verbeserter Meß - methoden (gegenüber (1-7)) keine THz-phononenstimulierte Lumineszenz gemessen werden, jedoch wurde ohne weiteres die um. ca 10 Größenordnungen schwächere IR -Emission bei Thermopulsmessungen registriert (Hinweis auf die Leistungsfähigkeit der Apparatur.Die IRS konnte umgekehrt von N.Riehl und Mitarbeitern nicht direkt (Laufzeitmessung) gemessen werden.

b, Die in der vorliegenden Arbeit beschriebenen Ergebnisse sind konsistent mit den Grundlagen der Lumineszenzphysik (Thermolumineszenz,IRS,Elektrophotolumineszenz, Szintil - lationen von Kristallen bei Teilcheneinschlag) und der Weisschen Theorie über die Emission von Phononen bei Thermopulsversuchen.Testmessungen mit Hilfe des supra - leitenden Bolometers verliefen erfolgreich.

Bei den Arbeiten (1-7) kann aus den beschriebenen Meßbedingungen über das Weissche Modell und dem Temperaturverhalten der Thermolumineszenz geschlossen werden, daß bei Thermopulsversuchen in (1-7) keine THz - phononenstimulierte Lumineszenz zu beobachten ist.
In der vorliegenden Arbeit wurde im Anschluß an die Diskussion der Meßergebnisse und dem Vergleich mit den früheren Arbeiten (1-7) das Quasiwasserstoffmodell als mikroskopische Theorie der " thermischen Ionisierung flacher Haftstellen in Halbleitern " auf das vorliegende Problem angewendet.In diesem Bild stellen die Zentralladung der Störstelle und das getrappte Loch eine wasserstoffähnliche Konfiguration dar, aus der auch die räumliche Ausdehnung eines Traps über viele Gitterabstände abgeschätzt werden kann. Akustische Phononen koppeln nur dann an solche Haftstellen , wenn ihre Wellenlängen mit dem Bohrschen Radius des Quasi - wasserstoffatoms übereinstimmen (47), d.h. die Frequenz der kopplungsfähigen Phononen ist kleiner 10^{12} Hz.Die Thermolumineszenz erfolgt über Multiphononenprozesse mit langwelligen akustischen Phononen. (Bei tiefen Temperaturen stehen nur solche Phononen zur Verfügung).Somit ist auch von dieser allgemeineren Betrachtung des Problems her plausibel, daß THz - Phononen nur mit sehr geringer Wahrscheinlich - keit an flache Haftstellen ankoppeln. und damit ZnO(Cu) als Detektor für einzelne THz - Phononen ausscheidet.
Das Quasiwasserstoffmodell läßt jedoch eine Entleerung von Traps durch einzelne Phononen dann zu , wenn die Energie - bedingung und die Kopplungsbedingung für die Wellenlänge des Phononens simultan erfüllt sind, d.h. das Trap flacher ist als die bisher bekannten Traps in ZnO.($E_{ther} \leq 5$ meV) Ein solcher Prozeß wurde z.B. von R.S. Crandall an GaAs beobachtet (phononenstimulierte Leitfähigkeit).

An tieferen Haftstellen ist sog. Photoionisation mit Phononenkopplung möglich.Hierbei kann die Fluoreszenzrate durch Pulse von Phononen mit " passender"Wellenlänge moduliert werden.Der Hauptenergiebeitrag zur Befreiung des Loches stammt hierbei von einem Photon.Bei der von R.Baum - gartner und K.F.Renk beobachteten phononenmodulierten Fluo - reszenz (mit Pulsphononen $\nu \lesssim 10^{12}$ Hz) könnte es sich um einen der genannten Prozesse handeln.Auf weitere Phononenkopplungen bei Trapping - und Retrappingvorgängen wurde hingewiesen. All diese Mechanismen arbeiten jedoch nur mit langwelligen Phononen und nicht mit THz - Phononen.

Literaturverzeichnis
==========

1 , Dissertation A.Müller 1973 TU München
2 , Dissertation R.Wengert 1974 TU München
3 , N.Riehl,A.Müller phys.stat.sol.(a) 23 435 1974
4 , N.Riehl,R.Wengert phys.stat.sol. (a) 28 503 1975
5 , N.Riehl,A.Müller phys.lett. 36 A 487 1971
6 , N.Riehl,A.Müller,R.Wengert Z.f.Naturforschung 28a 1040 1973
7 , N.Riehl J.of Luminescence 12/13 537 1976
8 , K.F.Renk Festkörperprobleme XII 1972
9 , H.Kinder Plenarvortrag DPG Bd. 10 1973
10, E.R.Cowley,R.A.Cowley Proc.Roy.Soc. A 287 259 1965
11, J.P.Maneval,A.Zylbersztejn,D.Huet phys.rev.lett.27 1375 1971
12, J.Schmid,H.Bross Z.f.Physik 229 474 1969
13, K.F.Renk,J.Deisenhofer phys.rev.lett. 26 764 1971
14, K.F.Renk,J.Peckenzell J.de physique C4 103 1972
15, H.E.Jackson,Ch.T.Walker phys.rev. B 3 1428 1971
16, S.J.Rogers phys.rev. B 3 1440 1971
17, C.C.Ackermann,B.Bertmann phys.rev.lett. 16 789 1966
18, T.F.McNelly,S.J.Rogers phys.rev.lett 24 100 1970
19, A.K.McCurdi,H.J.Maris,C.Elbaum phys.rev. B 2 4077 1970
20, B.Taylor,H.J.Maris,C.Elbaum phys.rev.lett. 23 416 1969
21, B.Taylor,H.J.Maris,C.Elbaum phys.rev.B 3 1462 1971
22, V.Narayanamurti,C.M.Varma phys.rev.lett. 25 1105 1970
23, F.D.Tappert,C.M.Varma phys.rev.lett. 25 1108 1970
24, O.Weis Zeitschr. f. angew. Physik 26 325 1969
25, J.Heber,H.Murmann Zeitschr.f.Physik B 26 145 1977
26, N.Perrin,H.Budd phys.rev.lett.28 1701 1972
27, N.Perrin sol.state com. 17 131 1975
28, P.Herth,O.Weis Zeitschr.f.angew.Physik 29 101 1970
29, R.Baumgartner Diplomarbeit 1977 Universität Regensburg
30, R.Baumgartner,K.F.Renk Verhandlungen der DPG Freudenstadt 1978

31, R.J.Gutfeld,A.H.Nethercot phys.rev.lett. 12 641 1964
32, Dissertation V.Wittwer TU München 1973
33, R.Kammermeier Diplomarbeit TU München 1973
34, G.Baur,L.Mader,N.Riehl Z.f.Naturf. 24 a 1296 1969
35, R.Kammermeier,V.Wittwer,N.Eisenreich,K.Luchner
sol.state com. 19 461 1976
36, V.Wittwer, K.Luchner phys.stat.sol. (a) 25 559 1974
37, R.B.Murray,A.Meyer phys.rev. 122 815 1961
38, R.L.Garwin Rev.of Scie. Instr. 21 903 1950
39, H.Neuert Zählrohre und Szintillationszähler 1959
Verl. G.Braun,Karlsruhe
40, J.Schoenes,K.Kanazawa,E.Kaj J.of appl.phys. 48 2537 1977
41, R.Helbig J.of cryst.Growth 15 25 1972
42, RGwin,R.B.Murray phys.rev. 131 508 1963
43, H.D.Vasileff phys.rev. 96 603 1954
44, H.D.Vasileff phys.rev. 97 891 1955
45, R.Kubo phys.rev. 86 929 1952
46, J.H.Simpson Proc.Roy.Soc. 231 A 308 1955
47, M.Lax,E.Burstein phys.rev. 100 592 1955
48, M.Lax phys.rev. 119 1502 1960
49, A.W.Hewat sol.state com. 8 187 1970
50, A.R.Hutson J.of appl.phys. supplem. to Vol 32 2287 1961
51, T.B.Bateman J.of appl.phys. 33 330 1962
52, U.Rössler phys.rev 184 733 1969
53, J.J.Hopfield,D.G.Thomas J. phys.chem.solids 12 276 1960
54, E.Tomzig,R.Helbig J.of Luminescence 14 403 1976
55, Kohlrausch Bd.III
56, M.Goetze,O.Weis Z.f.Physik B 25 1 1976
57, Landolt - Börnstein Neue Serie II/5 1967
58, Landolt - Börnstein Neue Serie III/7d 1967
59, G.Dolling,R.A.Cowley Proc.phys.soc. 88 463 1966
60, V.H.Gebel Normalized Cumulativ Blackbody Functions
Aerospace Research USAF 1969
61, A.T.Vink,R.L.A.van der Hejden,A.C.van Amstel
J.of Luminescence 9 180 1974

62, A.F.Polepanov sov.phys.semicond. 11 1201 1977
63, R.S.Crandall sol.state com. 7 1109 1969
64, V.V.Popov,A.V.Chaplik sov.phys.semicond.10 1061 1976

Herrn Prof. Dr. K. Luchner danke ich für die Überlassung des Dissertationsthemas, sowie für hilfreiche Diskussionen und Hinweise im Verlauf der Arbeit.
Herrn Dr.H. Micklitz danke ich für die Unterstützung und Betreuung dieser Arbeit.
Für aufschlußreiche Diskussionen und ihr Interesse an dieser Arbeit danke ich den Herren Prof. K.F.Renk und R.Baumgartner von der Universität Regensburg, sowie Dr.W.Dietsche,Dr.V.Wittwer und R.Kammermeier. (TU München).
Für die Überlassung von ZnO - Einkristallen sei Herrn Dr.R.Helbig von der Universität Erlangen gedankt.
Ein besonderer Dank gilt Herrn Dr. Maier vom technologischen Labor der Sektion Physik/Universität München für die Erlaubnis zur Benutzung der Hochvakuumaufdampfanlage zur Präparation der Thermopulser - und Bolometerschichten.
Frl.D.Frischke sei für die praktische Durchführung dieser Arbeiten herzlich gedankt.
Für die technische Unterstützung und Beratung beim Ausbau der Apparatur sei Herrn G.Brandl gedankt.
Meinen Kollegen und Mitstreitern danke ich für das positive Betriebsklima, das mir die notwendige Rückenstärkung zur Durchführung dieser Arbeit gab.

Lebenslauf

Geboren am 3.3. 48 in München

Eltern:

Vater Robert Pickelmann

Mutter Elisabeth Pickelmann geb. Staudinger

1954 Besuch der Volksschule: Türkenschule in München

1958 Besuch des mathematisch - naturwissenschaftlichen Gisela - Gymnasiums in München

1967 Abitur

1967 Beginn des Physikstudiums im WS 67/68 an der Technischen Hochschule München

1969 Diplomvorprüfung 1.Teil

1970 Diplomvorprüfung 2. Teil

1973 Diplomhauptprüfung

1973 Beginn der Doktorarbeit am Institut E 14 des Physikdepartements der Technischen Universität München

1975 Wechsel zum Institut für Didaktik der Physik Sektion Physik der Ludwig - Maximilians - Universität München

1977 Anstellung am Institut für Angewandte Festkörper - physik der Fraunhofergesellschaft/ Freiburg Abteilung Displayphysik